

Entwicklung und Anwendung neuartiger Messverfahren zur Charakterisierung partikelförmiger Emissionen moderner Kraftfahrzeuge

Vom Fachbereich C (Mathematik und Naturwissenschaften)
der Bergischen Universität Wuppertal
zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Maik Bergmann
(*Dipl. Ing.*)



Wuppertal, November 2008

Gutachter:

Prof. Dr. T. Benter, BU Wuppertal
PD Dr. R. Vogt, Ford Forschungszentrum Aachen

Diese Dissertation kann wie folgt zitiert werden:

urn:nbn:de:hbz:468-20090544

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=urn%3Anbn%3Ade%3Ahbz%3A468-20090544>]

Die vorliegende Arbeit entstand am Ford Forschungszentrum Aachen und dem Ford Research and Innovation Center (MI, USA) in Zusammenarbeit mit dem Fach Physikalische Chemie im Fachbereich C, Mathematik und Naturwissenschaften der Bergischen Universität Wuppertal.

Folgende Publikationen wurden im Rahmen der Forschungsarbeit veröffentlicht:

- Vogt, R.; Scheer, V.; Kirchner, U.; Bergmann, M. Properties of Exhaust Particles from Modern Powertrain Technologies. 28. Internationales Wiener Motorensymposium, VDI Fortschrittsberichte, **2007**, Reihe 12, Nr. 639, Editor H. P. Lenz, ISBN 978-3-18-363912-0.
- Bergmann, M.; Scheer, V.; Vogt, R.; Benter, T. Comparison of the performance of real-time PM mass and number instrumentation for vehicle exhaust measurements. *SAE* 2007-24-0116, **2007**.
- Bergmann, M.; Vogt, R.; Szente, J.; Maricq, M.; Benter, T. Using ejector diluters to sample vehicle exhaust at elevated pressures and temperatures. *SAE* 2008-01-2434, **2008**.
- Bergmann, M.; Kirchner, U.; Vogt, R.; Benter, T. On-road and laboratory investigation of low-level PM emissions of a modern diesel particulate filter equipped diesel passenger car. submitted to *Atmos. Environ.*, **2008**.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit unter Betreuung von PD Dr. R. Vogt und Prof. Dr. T. Benter selbstständig verfasst habe.

Datum, Unterschrift

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Insbesondere gilt mein Dank Herrn PD Dr. Rainer Vogt für seine stete Bereitschaft zu offenen Diskussionen sowie für dessen vielseitige fachliche Hilfestellung. Für die Ermöglichung des sehr interessanten und lehrreichen Forschungsaufenthaltes am Ford Research and Innovation Center in den USA bin ich ganz besonders dankbar.

Herrn Prof. Dr. Thorsten Benter danke ich für die unkomplizierte Unterstützung und Förderung der Promotion seitens der BU Wuppertal.

Bei Herrn Volker Scheer und Herrn Dr. Ulf Kirchner bedanke ich mich für deren tatkräftige Hilfestellung während der Messkampagnen und die vielen wertvollen „Lehrstunden“, welche maßgeblich zur Erweiterung meines fachlichen Verständnisses beigetragen haben.

Ein besonderes Dankeschön geht auch an Frau Dr. Claudia Herudek. Ihre allgemeine Unterstützung sowie die fachlichen Gespräche stellten stets eine Bereicherung dar.

Herrn Dr. Matti Maricq und Herrn Joseph Szente danke ich besonders für die freundliche Aufnahme während meines Aufenthaltes am Ford Research Center in den USA. Die konstruktiven Diskussionen während der Erstellung der gemeinsamen Veröffentlichung waren sowohl aus fachlicher als auch methodischer Sicht ein Gewinn.

Weiterhin bedanke ich mich bei Herrn Norbert Schuster, Ljubo Kogoj und Dirk Hassdenteufel für die stets angenehme Zusammenarbeit bei allen Prüfstands- und Werkstattangelegenheiten.

Bei der Ford Motor Company bedanke ich mich für die finanzielle Unterstützung sowie für die Bereitstellung der erforderlichen messtechnischen Ausrüstung, ohne welche diese Arbeit nicht realisierbar gewesen wäre.

Abstract

Caused by the complex exhaust aftertreatment systems used in modern diesel vehicles, measurement of the exhaust related particulate matter (PM) presents a challenging task. While the widely introduced diesel particle filter technology (DPF) reduces exhaust PM very effectively, resuspension of particles will become increasingly important in the future.

In order to allow the time- and size resolved quantification of PM-emissions when sampling at elevated pressures and temperatures an advanced measurement technique was derived and characterized. For that purpose an ejector-diluter based sampling method has been developed. It achieved accuracies of the predicted dilution factor better than $\pm 8\%$ (95% confidence interval) for sample pressures in the range of 1000 – 4000 mbar and temperatures between 20 – 200°C. Furthermore, 4 real-time PM mass or number instruments (EEPS3090, DMS500, DMM230, AVL483) have been evaluated in terms of their usability for vehicle exhaust measurements. As a result correlations between those instruments and the standard methods (SMPS, CPC, gravimetric filter sampling) were determined, and found to be reasonable. The effective particle density needed for converting the measured particle size spectra into PM-masses was determined to be $\rho_{eff}(D_p) \approx 1 \text{ g/cm}^3$.

The developed method was exemplarily applied for the determination of the DPF filtration efficiency of a modern diesel vehicle. During the transient NEDC driving cycle the average DPF efficiency was 99.5% with respect to PM-mass and 99.3% for PM-number. The resulting low-level PM emissions were measured both on a test track and at a chassis dynamometer. Over a wide range of engine operating conditions size resolved emissions factors were consistently about 2 orders of magnitude lower compared to a vehicle without a DPF. During DPF regeneration numbers of nucleation particles increased by 2-3 orders of magnitude while the number of soot particles remained about the same. The formation of these particles was suggested to be linked to the amount of sulphate accumulated within the DPF.

Additionally, basic evaluations of resuspension and brake wear have been performed. The results showed an exponential relationship between the number-concentration of the resuspended particles and the vehicle speed. Furthermore, the road type was found to play an

important role. The observed number weighted size distributions of the resuspended particles as well as for brake wear showed count median diameters between 1 -3 μm . These findings were compared to data obtained from a literature survey, and were found to be in good agreement.

Formelzeichen- und Abkürzungsverzeichnis

Formelzeichen:

A_1	–	Kalibrierfaktor
A_2	–	Kalibrierfaktor
B	–	Kalibrierfaktor
C	–	Durchflusskoeffizient
D	–	geometrischer Durchmesser am Düseneingang
d	–	geometrischer Durchmesser am Düsenausgang
D_{ae}	–	aerodynamischer Partikeldurchmesser
D_p	–	Elektromobilitäts-Durchmesser
DF	–	Verdünnungsfaktor
EF	–	Emissionsfaktor
K	–	gasspezifische Konstante
\dot{m}	–	Massefluss
m	–	Masse
N	–	Partikel-Anzahlkonzentration
n	–	Zählvariable der Größenklasse
P	–	statischer Druck am Düseneingang
P_{outlet}	–	Absolutdruck am Auslass
P_{sample}	–	Absolutdruck am Einlass (Probendruck)
P_1	–	statischer Druck vor Ejektor-Düse
P_2	–	statischer Druck nach Ejektor-Düse
Q_{sample}	–	Probenfluss
$Q_{dilution}$	–	Verdünnungsgasfluss
Q_{total}	–	Gesamtfluss ($Q_{sample} + Q_{dilution}$)
S	–	Düsen-Querschnittsfläche
T	–	Temperatur
t	–	Zeit
V_{exh}	–	Abgasvolumen

ΔP	–	Druckdifferenz über dem Verdünner ($P_{sample} - P_{outlet}$)
ΔP_{min}	–	minimal mögliche Druckdifferenz (Kalibrierparameter)
$\varepsilon_{1/2}$	–	Expansionszahlen
ρ	–	Fluidichte
ρ_{eff}	–	effektive Partikeldichte

Abkürzungen:

A/D	–	Analog-Digital Wandler
AGR	–	Abgasrückführung
APS	–	Aerodynamic Particle Sizer
AVL483	–	AVL-micro soot sensor
CAST	–	Combustion Aerosol Standard
CFO	–	critical flow orifice
CMD	–	count median diameter
CPC	–	condensation particle counter
CVS	–	constant volume sampling
DF	–	dilution factor
DMA	–	differential mobility analyzer
DMM	–	Dekati mass monitor
DMS	–	differential mobility spectrometer
DPF	–	diesel particle filter
EC	–	elemental carbon
EEPS	–	engine exhaust particle sizer
ELR	–	European load response test
ESC	–	European stationary cycle
ETC	–	European transient cycle
EUDC	–	Extra-urban driving cycle
FPS	–	fine particle sampler
GC	–	Gaschromatographie
IC	–	Ionenchromatographie
MFM	–	mass flow meter

NEDC	–	new European driving cycle
OC	–	organic carbon
PAK	–	polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe
PM	–	particulate matter
PMP	–	particle measurement programme
RH	–	relative humidity
SLPM	–	standard liters per minute
SMPS	–	scanning mobility particle sizer
TC	–	thermocouple
TSP	–	total suspended particulate matter
VOF	–	volatile organic fraction

Inhalt

SELBSTSTÄNDIGKEITSERKLÄRUNG.....	IV
ABSTRACT.....	VI
FORMELZEICHEN- UND ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS	VIII
1 EINLEITUNG / MOTIVATION	1
1.1 Hintergrund – Atmosphärisches Aerosol.....	1
1.1.1 Allgemeines / Begriffsbestimmungen.....	1
1.1.2 Eigenschaften / Wirkungen des Atmosphärischen Aerosols.....	2
1.1.3 Quellen luftgetragener Partikel	4
1.2 Partikelquelle Straßenverkehr.....	6
1.2.1 Motorabgasemissionen.....	7
1.2.2 Abrieb / Resuspension	8
1.3 PM Emissionsgrenzwerte und Standardmessverfahren zu deren Überwachung	9
1.3.1 Grenzwerte	9
1.3.2 Standardmessverfahren	10
1.4 Zielsetzung dieser Arbeit.....	11
2 ERWEITERTE CHARAKTERISIERUNG PARTIKELFÖRMIGER MOTORABGASEMISSIONEN MODERNER KRAFTFAHRZEUGE	12
2.1 Messungen im Emissionslabor	12
2.1.1 Evaluierung verfügbarer Messgeräte	13
2.1.1.1 Messgeräte und Messaufbau	13
2.1.1.2 PM-Anzahl Korrelation	17
2.1.1.3 Vergleich der Größenverteilungen.....	18
2.1.1.4 PM-Masse Korrelation.....	22
2.1.2 Entwicklung und Bewertung eines neuen Probenahmekonzeptes	26
2.1.2.1 Grundlagen und Modellierung des Ejektor-Verdünnungssystems	27
2.1.2.2 Kalibrierung des Verdünners	32
2.1.2.3 Analyse der theoretisch zu erwartenden Genauigkeit / Fehlerabschätzung.....	38
2.1.2.4 Validierung der entwickelten Methode unter realen Testbedingungen	40
2.1.2.5 Vergleich mit kommerziell erhältlichen Verdünnungssystemen	43
2.1.3 Anwendung der entwickelten Methode zur DPF-Charakterisierung	47
2.1.3.1 Bestimmung der DPF Effizienz bezüglich PM-Anzahl.....	49
2.1.3.2 DPF Effizienz für PM-Masse	50
2.2 Atmosphärische Messungen in der Abgasfahne.....	52
2.2.1 Motivation – realer Aerosolverdünnungsprozess.....	53
2.2.2 Beschreibung der Messkampagne / Messaufbau	54
2.2.2.1 Messungen auf der Teststrecke.....	54
2.2.2.2 Labormessungen	56

2.2.3 Ergebnisse und Vergleich mit den Labormessungen	56
2.2.3.1 Vollast Beschleunigungszyklus	56
2.2.3.2 DPF Regeneration	62
2.2.3.3 Benzinfahrzeug	67
3 GRUNDLAGENUNTERSUCHUNGEN ZU RESUSPENSION UND ABRIEB	69
3.1 Derzeitiger Wissensstand.....	69
3.1.1 Allgemeines / Eigenschaften	69
3.1.2 Einflussgrößen	70
3.1.3 Methoden zur Quantifizierung / ermittelte Emissionsfaktoren	71
3.2 Eigene Messungen	74
3.2.1 Messaufbau	74
3.2.2 Ergebnisse	75
3.2.2.1 Vergleich unterschiedlicher Probenahmestellen	75
3.2.2.2 Einfluss der Fahrgeschwindigkeit	76
3.2.2.3 Fahrbahneinfluss	78
3.2.2.4 Bremsenabrieb	80
4 DISKUSSION UND EINORDNUNG DER MESSERGEBNISSE	82
4.1 Zusammenfassung / Vergleich der Kfz-spezifischen Partikelquellen	82
5 ZUSAMMENFASSUNG / AUSBLICK.....	86
LITERATURVERZEICHNIS	89
ANHANG.....	96

1 Einleitung / Motivation

1.1 Hintergrund – Atmosphärisches Aerosol

Das atmosphärische Aerosol der Erde wird in das Aerosol der Troposphäre, welche den untersten Teil der der Atmosphäre bis in eine Höhe von etwa 12 km umfasst, und das Aerosol der Stratosphäre, die von ca. 12 bis 50 km Höhe reicht, unterschieden. Da dieser untere Bereich der Atmosphäre den menschlichen Lebensraum einschließt und in direkter Wechselwirkung mit dem Leben auf der Erde steht, kommt ihm eine besondere Bedeutung zu. Insbesondere Veränderungen der Zusammensetzung der Troposphäre/Stratosphäre durch menschliche Aktivitäten und die damit verbundenen komplexen Rückwirkungen (z.B. Verstärkung des Treibhauseffektes und Schwächung der Ozonschicht) erfahren eine stetige Zunahme des öffentlichen Interesses. Eine wesentliche Rolle spielen dabei die Emissionen des Straßenverkehrs. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit den von Kraftfahrzeugen emittierten Partikeln, welche neben den gasförmigen Emissionen einen bedeutenden Einfluss auf das Umgebungsluft-Aerosol ausüben.

1.1.1 Allgemeines / Begriffsbestimmungen

Aerosole sind stabile Suspensionen von festen und/oder flüssigen Partikeln in einer Gasphase. Dabei umfasst der Begriff „Aerosol“ grundsätzlich sowohl die Partikel als auch die sie umgebende Gasphase.

Aufgrund der unterschiedlichen Formen und Dichten der vorkommenden Partikel nutzt man zur Beschreibung ihrer Größe häufig Äquivalentdurchmesser. Diese entsprechen dem geometrischen Durchmesser einer Kugel, welche bezüglich des angewendeten Messverfahrens das gleiche Verhalten (z.B. hinsichtlich Aerodynamik oder Elektromobilität) aufweist wie das zu beschreibende Partikel. Somit wird u.a. zwischen aerodynamischem Partikeldurchmesser (D_{ae}) und Elektromobilitäts-Durchmesser (D_p) unterschieden. Zur Klassifizierung von Partikeln entsprechend ihrer Größe erfolgt oft die Zuordnung zu PM_x -Größenklassen, wobei x die obere Grenze der aerodynamischen Durchmesser der jeweiligen Größenklasse in Mikrometer angibt (z.B. PM_{10} oder $PM_{2.5}$).

In der Atmosphäre befindliche Partikel sind durch hochvariable chemische Zusammensetzungen und Größenverteilungen gekennzeichnet, und können einen

Größenbereich von einigen Nanometern bis hin zu 100 Mikrometern überdecken. Sie werden entweder direkt in die Umgebungsluft emittiert (Primärpartikel, z.B. Seesalz-, Staub- oder Rußpartikel) oder in Folge physikalischer Prozesse oder chemischer Reaktionen gebildet und verändert (Sekundärpartikel, z.B. Nukleationspartikel oder Kondensate). Partikel mit Durchmessern kleiner $2.5 \mu\text{m}$ werden als feine Partikel bezeichnet, größere ordnet man den groben Partikeln zu. Bei Durchmessern kleiner $0.1 \mu\text{m}$ spricht man von Ultrafein-Partikeln.

Von der Emission bis zur Deposition, d.h. Ausscheidung der Partikel aus der Atmosphäre, durchlaufen diese folgende, durch komplexe Prozesse geprägte, Stationen: Emission \rightarrow Transport \rightarrow Transformation \rightarrow Immission \rightarrow Deposition. Dabei versteht man unter Partikel-Immission die örtlich in der Umgebungsluft enthaltenen Partikel, welche auf die Umwelt einwirken. Die Immission wird durch örtliche Emissionen sowie über Transport, physikalische und chemische Transformationen (z.B. Koagulation, Adsorption, Desorption, Kondensation, chem. Reaktionen) und Depositionsprozesse beeinflusst.

1.1.2 Eigenschaften / Wirkungen des Atmosphärischen Aerosols

Aufgrund ihrer Größenverteilungen und der physikalisch-chemischen Eigenschaften entfalten die im atmosphärischen Aerosol befindlichen Partikel sehr komplexe Wirkungen. Im Blickpunkt stehen dabei insbesondere deren physiologische sowie klimatologische Effekte.

So nehmen Partikel aufgrund ihrer lichtstreuenden, –reflektierenden und –absorbierenden Eigenschaften direkten Einfluss auf den Strahlungshaushalt der Erde [1]. Abhängig von Konzentration, Größenverteilung, Form, chemischer Zusammensetzung und Mischungszustand der in der Luft enthaltenen Partikel haben diese entscheidenden Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Atmosphäre. Neben einer Trübung der Luft durch Erhöhung der Lichtabschwächung [2] bewirken die Aerosolteilchen eine Verstärkung der Streuung und Reflexion des eingestrahnten Sonnenlichtes. Weiterhin nehmen Aerosole aktiv an Wolkenbildungsprozessen teil (Kondensations-Kerne), wodurch eine indirekte Beeinflussung des Strahlungshaushaltes der Erde durch Streuung und Reflexion der Solarstrahlung an Wolken sowie die Mitwirkung an Niederschlagsprozessen erfolgt [3]. Somit stellen Partikel insbesondere im Hinblick auf das Wettergeschehen einen wichtigen, unverzichtbaren Bestandteil der Atmosphäre dar. Insgesamt wird davon ausgegangen, dass die atmosphärischen Partikel sowohl durch direkte- als auch durch Wolkenalbedo-Wirkung global eine abschwächende Wirkung auf den Strahlungsantrieb der Erde haben [4], wobei

Rußpartikel aufgrund ihrer Absorptionswirkung lokal einen gegenteiligen Effekt hervorrufen können.

In der Debatte um Gesundheitseffekte durch das Einatmen der luftgetragenen Partikel stehen derzeit insbesondere die partikelförmigen Emissionen von Fahrzeugen im Blickpunkt des öffentlichen Interesses. Zwar hat der Kraftfahrzeugverkehr nur einen relativ geringen Anteil an der gesamten globalen Emission an Partikelmasse, allerdings wird aufgrund des speziellen Emissionsprofils von einer besonderen Relevanz für die menschliche Gesundheit ausgegangen. Dies ist einerseits auf die Nähe der Emittenten zum Menschen (z.B. Fahrzeugverkehr in Innenstädten) zurückzuführen. Andererseits weisen medizinische Studien verstärkt auf ein erhöhtes Gefährdungspotential von Rußpartikeln aus Verbrennungsprozessen, welche neben Industrie- und Kleinf Feuerungsanlagen insbesondere in Fahrzeug-Verbrennungsmotoren ablaufen, hin. So kommen aktuelle Studien zum derzeitigen Stand der Aerosol-Wirkungsforschung zusammenfassend zu folgenden Ergebnissen (Zitat, [5]):

„PM_{2,5} ist ein geeigneter Indikator zur Beschreibung der durch PM-Exposition verursachten Effekte, insbesondere in Bezug auf die Mortalität (Sterblichkeit) sowie Herz-Kreislaufkrankungen.

Obwohl Feinstaub einen stärkeren Zusammenhang mit einigen schweren Gesundheitsauswirkungen zeigt als Grobstaub, gibt es Hinweise, dass auch die grobe Fraktion (PM₁₀ minus PM_{2,5}) in Beziehung mit bestimmten Gesundheitsauswirkungen steht.“

„Diverse Studien legen nahe, dass besonders folgende PM-Inhaltsstoffe toxikologisch wirksam sind:

- Bestimmte Metalle
- Organische Verbindungen (wie etwa PAK's)
- Ultrafeine Partikel (hauptsächlich Ruß)
- Endotoxine

Kritische Quellen sind Abgasemissionen des Straßenverkehrs sowie Aerosole aus der Verfeuerung von festen und flüssigen Brennstoffen.“

Und (Zitat, [6]):

„Aus den epidemiologischen Studien kann derzeit nur die Partikelmasse als die relevante Dosimetrik abgeleitet werden. Dabei sollte aber wegen der toxikologisch belegten unterschiedlichen Wirkungsrelevanz zwischen dem löslichen und unlöslichen Anteil der Partikelmasse unterschieden werden. Schwefelsäure-, Sulfat-, und Nitratanteile haben im Vergleich zum Ruß geringeres toxisches Potential.“

„Ultrafeine Partikel scheinen eine besondere Bedeutung zu haben, da sie zum einen über eine große spezifische Oberfläche verfügen, zum anderen wegen ihrer Kleinheit die Lungenepithelschicht durchdringen können und daher auch systematisch verfügbar werden.“

„Flüchtige und semiflüchtige Verbindungen adsorbiert an Partikeln können irritierend und allergisierend wirken. Aromatische Verbindungen sind z.T. mutagen und kanzerogen.“

„Aus toxikologischer Sicht ergeben sich daher für die Deselemissionen folgende Größen als relevante Messgrößen:

- *Masse*
 - *lösliche Fraktion*
 - *unlösliche Fraktion*
- *Partikeloberfläche*
 - *PAH-Gehalt*
 - *Gehalt an Übergangsmetallverbindungen*

Obwohl daraus prinzipiell eine Gesundheitsrelevanz für alle Partikel im PM₁₀-Bereich abgeleitet werden kann, wird jedoch die spezielle Bedeutung der von Kraftfahrzeugen emittierten Aerosolpartikel aufgrund deren geringer Größe und Zusammensetzung deutlich.

Atmosphärische Partikel nehmen weiterhin an heterogenen Reaktionen teil, wodurch sowohl die Partikel selbst, als auch die sie umgebende Gasphase eine Änderung hinsichtlich Zusammensetzung sowie physikalisch-chemischer Eigenschaften erfahren (z.B. [7]).

Durch Deposition von luftgetragenen Partikeln an exponierten Oberflächen können außerdem Veränderungen auftreten, welche z.B. die Vergrauung von Fassaden bewirken.

1.1.3 Quellen luftgetragener Partikel

Partikel werden auch ohne Zutun des Menschen durch natürliche Vorgänge in die Atmosphäre eingebracht, oder dort als Sekundäraerosol gebildet. Abschätzungen [8] zeigen sogar, dass der überwiegende Teil der gesamten in der Atmosphäre enthaltenen Partikelmasse aus natürlichen Quellen stammt (ca. 90%). Allerdings spiegelt dieser Mittelwert aufgrund der hohen örtlichen und zeitlichen Variabilität nicht die tatsächlichen lokalen Verhältnisse an beliebigen Orten wider. Abbildung 1-1 gibt einen Überblick über wichtige Quellen von Aerosolpartikeln in Industriestaaten. Diese Angaben können den für die jeweilige Region gültigen Emissionskatastern entnommen werden. Müller [9] bestimmte den Anteil der anthropogenen Quellen an der gesamten PM₁₀-Masseemission im ländlichen Raum Deutschlands zu 79% (21% aus natürlichen Quellen). Für PM_{2,5} ergaben sich 84% vom Menschen verursachter Beitrag.

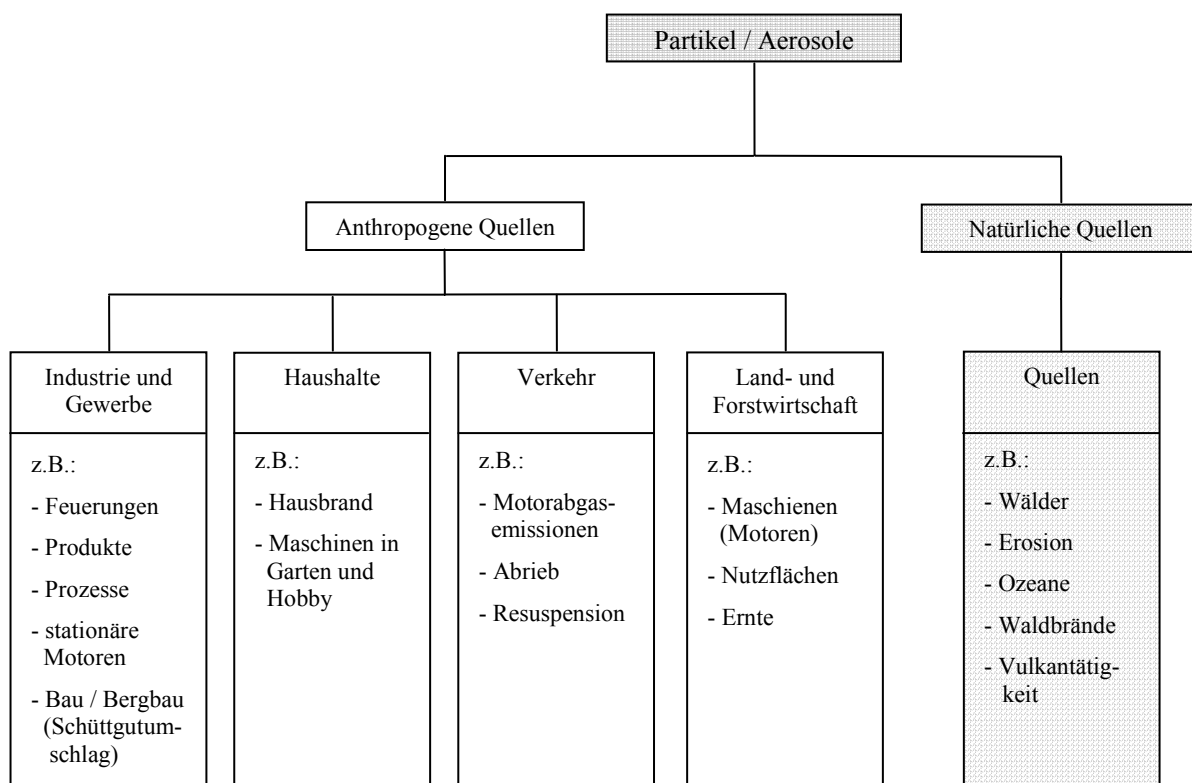


Abbildung 1-1: Wichtige Aerosolquellen in Industriestaaten und deren Untergliederung.

Aus dem Vergleich der anthropogenen Beiträge zur Gesamtpartikelmasse (alle Partikelgrößen) mit den Anteilen im PM_{10} -Bereich geht hervor, dass die Partikel im gesundheitsrelevanten Bereich hauptsächlich durch Aktivitäten des Menschen beeinflusst werden. Dabei spielen insbesondere Industrieprozesse, der Hausbrand (Kleinfeuerungsanlagen) und die Emissionen des Straßenverkehrs eine entscheidende Rolle. In Abbildung 1-2 sind die Anteile der einzelnen Hauptemittentengruppen für das Bezugsjahr 2000 dargestellt. Dabei wurde eine abgeschätzte Gesamt-Partikelmasse von 225 kt/a zugrunde gelegt.

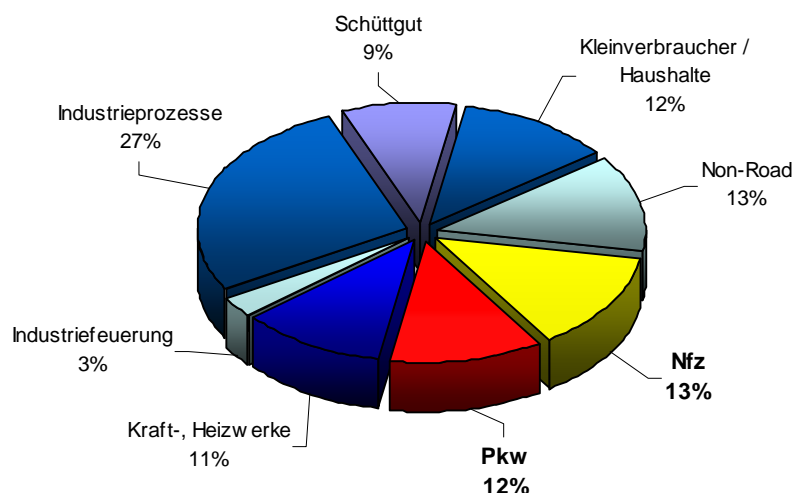


Abbildung 1-2: *Anteile der Emittenten an den anthropogenen PM₁₀-Emissionen in Deutschland (nach [10]; Pkw = Personenwagen, Nfz = Nutzfahrzeug).*

Entsprechend dieser Abschätzung zeigt sich, dass der Straßenverkehr einen durchschnittlichen Anteil von ca. 25 % an der insgesamt emittierten Partikelmasse im Größenbereich kleiner 10 µm hat.

1.2 Partikelquelle Straßenverkehr

Im Folgenden soll der Straßenverkehr als Aerosolquelle etwas genauer betrachtet werden. Abbildung 1-3 gibt einen Überblick über die Kfz-spezifischen PM₁₀-Emissionen.

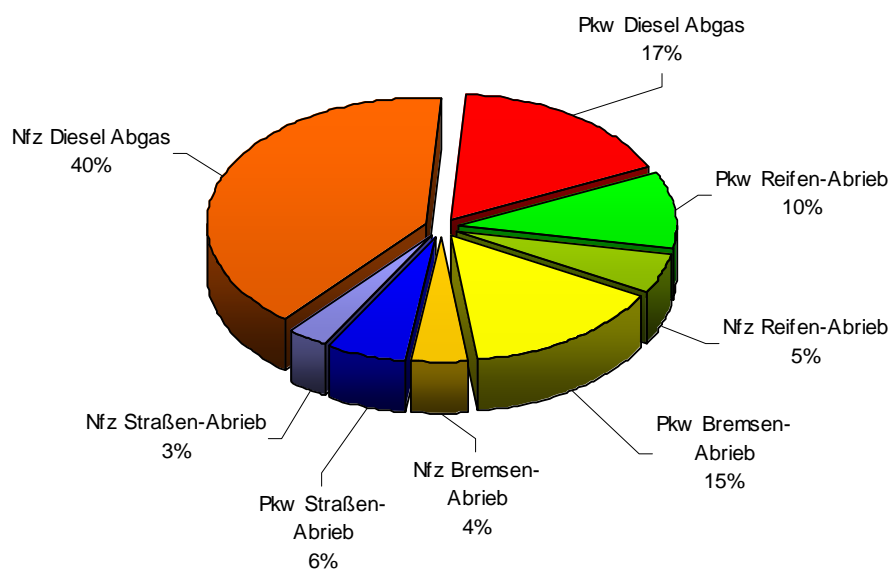
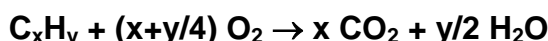


Abbildung 1-3: *Aufteilung der PM₁₀ – Emissionen des Pkw- und Nfz-Verkehrs in Deutschland für das Jahr 2000 (nach [11]).*

Es kann hierbei entsprechend der verschiedenen Entstehungsmechanismen grundsätzlich zwischen Abgas-, Abrieb- und Resuspensionspartikeln unterschieden werden.

1.2.1 Motorabgasemissionen

Bei idealer, d.h. vollständiger Verbrennung, von Kohlenwasserstoffen (z.B. schwefelfreier Kraftstoff) würde nach folgender Bruttoreaktionsgleichung ausschließlich Wasserdampf und Kohlendioxid entstehen:



Aufgrund von Inhomogenitäten bei der Gemischaufbereitung kommt es insbesondere beim Dieselmotor sowie beim direkt einspritzenden Ottomotor zur teilweise unvollständigen Verbrennung des Kraftstoffes. Dadurch erfolgt neben der Entstehung von gasförmigen Schadstoffen die Bildung von Rußpartikeln. Einen ausführlichen Überblick über die dabei ablaufenden, hoch komplexen Prozesse der Rußerzeugung gibt Lahaye [12]. Die daran anschließende Rußalterung im Abgassystem wird in folgender Abbildung veranschaulicht.

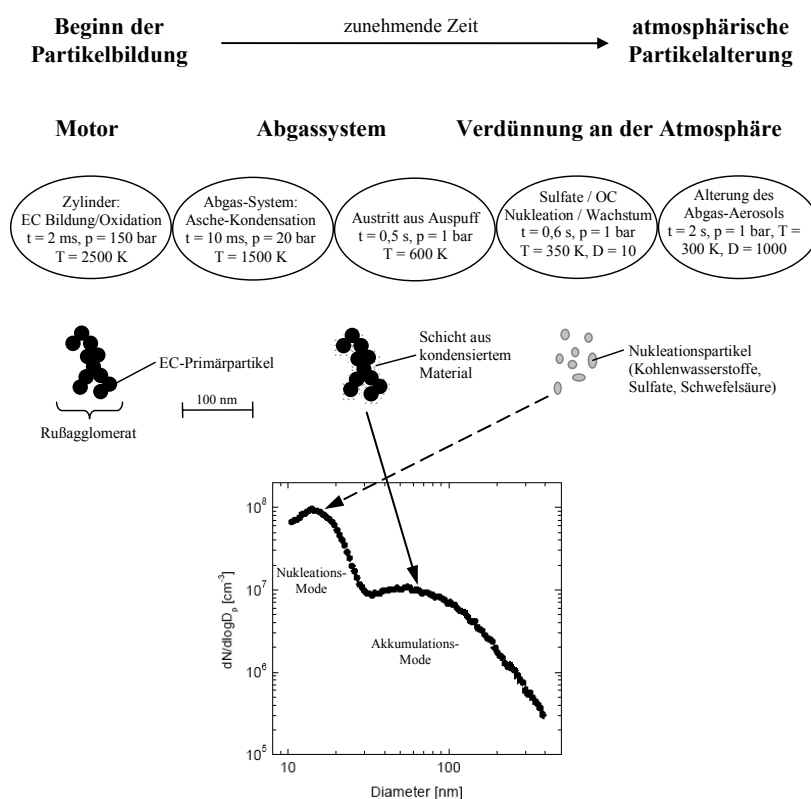


Abbildung 1-4: Schematische Darstellung der Partikelbildung in Dieselmotorabgasen mit daraus resultierender typischer Größenverteilung (nach [13], [14]).

An den im Zylinder gebildeten Rußagglomeraten kommt es während der Abkühlung der Abgase im bzw. beim Verlassen des Abgassystems zur Aufkondensation von organischen (z.B. PAK's) und anorganischen (z.B. Wasser, Sulfate) Verbindungen. Eine Zusammenstellung typischer Inhaltsstoffe der so gebildeten Rußpartikel ist im Anhang in Tabelle A-1 zu finden. Zusätzlich zu den Rußpartikeln können unter bestimmten Voraussetzungen (u.a. schwefelhaltiger Kraftstoff, spezielle Motorlast) kleinere Nukleationspartikel (Sekundärpartikel) entstehen, welche meist aufgrund der mit der Abkühlung einhergehenden Übersättigung von Schwefel- bzw. Salpetersäure gebildet werden. Die dann entstehende typische bi-modale Partikel-Größenverteilung ist in Abbildung 1-4 gezeigt. Die überwiegende Mehrheit der Motorabgas-Partikel befindet sich im ultrafeinen Bereich.

1.2.2 Abrieb / Resuspension

Die beim Fahren notwendigen Beschleunigungs-, Brems-, und Lenkkräfte werden durch Radschlupf sowie Radschräglauf erzeugt. Dabei wird die durch Reibkräfte entstehende Energie von den Reibpartnern (Straße, Reifen) aufgenommen und bewirkt dort neben einer Erwärmung auch Materialabrieb. Die dadurch entstehen Reifen- bzw. Straßenabriebpartikel können dann in die Umgebungsluft emittiert werden. Ähnliche ablaufende Prozesse bewirken auch bei Kupplung und Bremse die Emission von entsprechenden Abriebpartikeln. Die Komposition und Menge der entstehenden Aerosolteilchen hängt insbesondere von den Eigenschaften der Reibpaarungen und der Fahrsituation ab.

Die bei den beschriebenen Abriebprozessen entstandenen Partikel werden nicht vollständig durch Luftbewegungen von der Fahrbahn weg transportiert. Das zurückbleibende Material lagert sich auf der Straßenoberfläche ab und kann dann, gemeinsam mit anderen staubförmigen Ablagerungen, beim Überfahren von Fahrzeugen aufgewirbelt werden. Die so in die Luft eingebrachten Partikel werden als Resuspensionspartikel bezeichnet. Abrieb- und Resuspensionspartikel befinden sich meist in einem Größenbereich von ca. 1 bis 10 Mikrometern.

Eine ausführlichere Untersuchung zu den aus Abrieb- und Resuspensionsprozessen hervorgehenden Partikeln erfolgt in Kapitel 3.

1.3 PM Emissionsgrenzwerte und Standardmessverfahren zu deren Überwachung

Angetrieben durch den signifikanten Beitrag der Motorabgas-Emissionen zur Partikelimmission und den Erkenntnissen zu deren Wirkungen, insbesondere hinsichtlich möglicher Gesundheitseffekte, erfolgte eine Limitierung der Partikel-Masse im Abgas von Dieselfahrzeugen.

1.3.1 Grenzwerte

Tabelle 1-1 zeigt die Entwicklung der Partikelgrenzwerte der EU für Pkw und Nfz, wobei deutlich die stetige Verschärfung der Grenzwerte zu erkennen ist.

Tabelle 1-1: *Entwicklung der europäischen Grenzwerte für Partikelemissionen von Diesel-Fahrzeugen.*

	Pkw-Grenzwerte (in mg/km)	Nfz- und Bus-Grenzwerte (in g/kWh)
EURO 1 (ab 1992/93)	180	0,4
EURO 2 (ab 1995/96)	80	0,15
EURO 3 (ab 2000)	50	0,10 (ESC / ELR-Test) 0,16 (ETC-Test)
EURO 4 (ab 2005/6)	25	0,02 (ESC / ELR-Test) 0,03 (ETC-Test)
EURO 5 (ab 2009)	5	0,02 (ESC / ELR-Test) 0,03 (ETC-Test)

Anmerkung: ESC = European Stationary Cycle; ELR = Rauchgrenzwert; ETC = European Transient Cycle

In der derzeit gültigen Euro-4 Norm ist ausschließlich die Masse der Diesellabgaspartikel reglementiert. Die Einhaltung der entsprechenden Grenzwerte wird zur Zulassung von Neufahrzeugen bei der Typprüfung überprüft (Homologation), und muss vom Fahrzeughersteller für eine bestimmte Nutzungsdauer garantiert werden.

Entwürfe für die zukünftige Gesetzgebung (EURO 5/6) sehen neben einer Begrenzung der PM-Masseemissionen zusätzlich die Überwachung bzw. Beschränkung der PM-Anzahl vor. Als wahrscheinlicher Emissionsgrenzwert für Diesel Pkw gelten 6×10^{11} Partikel/km. Zusätzlich soll dann auch der Partikelaustritt von direkt einspritzenden Ottomotoren limitiert werden.

1.3.2 Standardmessverfahren

Bei der Homologation von neuen Fahrzeugmodellen entsprechend der EU-Abgasnormen wird bei Pkw der New European Driving Cycle (NEDC, [15]) zugrunde gelegt. Dieser stellt einen synthetischen, genormten Fahrzyklus dar, welcher das typische Pkw-Einsatzspektrum bzgl. Motor-Betriebszuständen möglichst repräsentativ abbilden, und vergleichbare Anforderungen sicherstellen soll. Um entsprechende Sicherheit bei der Fahrzeugentwicklung zu erreichen wird der NEDC auch während der Entwicklungsphase als Standard-Testzyklus genutzt.

Der Fahrzyklus wird auf einem Rollenprüfstand (s. Abbildung A-1 im Anhang) abgefahren, und die reglementierten Emissionen gemessen. Ein typischer Aufbau zur PM-Masse Bestimmung ist in Abbildung 1-5 schematisch dargestellt.

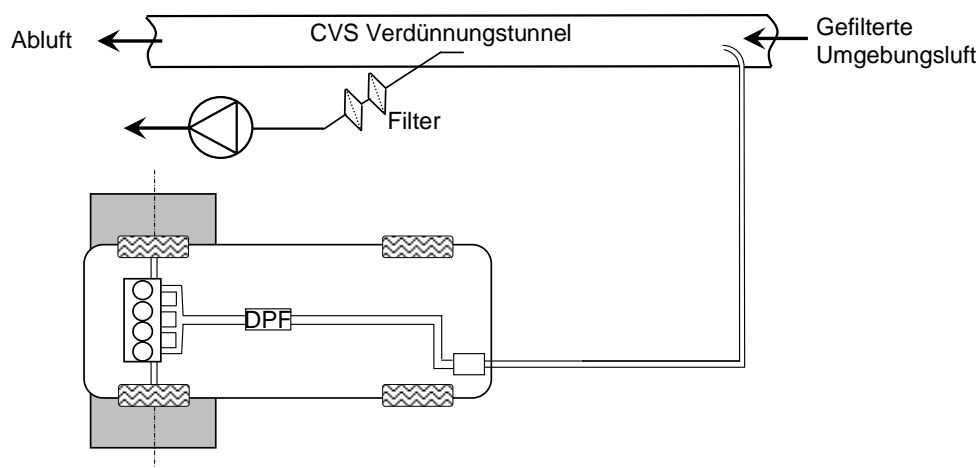


Abbildung 1-5: Schematische Darstellung des Standard-Messaufbaus zur Bestimmung der PM-Masseemissionen von Fahrzeugen am Rollenprüfstand.

Hierbei ist die Partikelmasse über das in der Richtlinie [16] festgelegte Messverfahren als jene festen und flüssigen Abgasbestandteile definiert, welche bei einer definierten Maximaltemperatur von 51.7 °C (125 °F) aus dem mit gefilterter Umgebungsluft verdünnten Abgas auf einem definierten Probefilter abgeschieden werden können. Zur Messung wird das gesamte Abgas beim Durchströmen eines Vollstromverdünnungstunnels (CVS) kontinuierlich mit gefilterter Umgebungsluft verdünnt (Verhältnis Abgas/Luft ca. 1/10). Ein Teilstrom des im CVS-Tunnel konditionierten Abgases wird durch den Probefilter gepumpt, auf welchem sich dann die gravimetrisch zu messenden Partikel abscheiden. Durch Wägung nach

vorheriger Konditionierung (bzgl. Temperatur und Feuchte) kann die Partikelmasse dann aus der Gewichts Differenz zum unbeladenen Filter bestimmt werden.

1.4 Zielsetzung dieser Arbeit

Die vorliegende Arbeit soll einen Beitrag zur genaueren Beurteilung und Quantifizierung der partikelförmigen Emissionen moderner Pkw leisten, und somit zum besseren Verständnis der Partikelquelle Straßenverkehr beitragen.

Einen besonderen Schwerpunkt stellt dabei die Problematik der messtechnischen Erfassung von Motorabgas-Partikeln bei niedrig emittierenden, Dieselpartikelfilter (DPF)-ausgerüsteten Diesel-Fahrzeugen dar. Hierbei soll insbesondere ein an die durch moderne Abgasnachbehandlung gestiegenen messtechnischen Anforderungen angepasstes Messverfahren erarbeitet und angewendet werden. Zu berücksichtigen sind dabei speziell Forderungen nach hoher Zeit- und Größenauflösung, niedriger Nachweisgrenze, hoher Genauigkeit, Flexibilität bei der Probenahme sowie die Vergleichbarkeit zu den Standardverfahren. Die Beurteilung der Aussagekraft von Labormessungen im Hinblick auf das reale Emissionsverhalten bildet einen weiteren Schwerpunkt bei der Untersuchung des Abgasaerosols.

Neben den Motorabgas-Partikeln sollen außerdem die aus Abrieb- und Resuspensionsprozessen hervorgehenden Partikel betrachtet werden. Aufgrund der zukünftig zu erwartenden signifikanten Reduktion der Abgas-Partikelmasse erlangt dieser bisher relativ wenig erforschte Bereich der partikulären Kfz Emissionen zunehmende Bedeutung.

2 Erweiterte Charakterisierung partikelförmiger Motorabgasemissionen moderner Kraftfahrzeuge

2.1 Messungen im Emissionslabor

Das unter 1.3.2 beschriebene Standard-Messverfahren ermöglicht eine relativ genaue und reproduzierbare Messung der durchschnittlich über den Fahrzyklus im Abgas enthaltenen PM-Masse. Im Hinblick auf zukünftige Entwicklungen bestehen jedoch folgende Nachteile:

- Es werden keine Daten über die Partikel-Größenverteilungen oder die PM-Anzahl gewonnen, obwohl aus Sicht der Aerosol Wirkungsforschung gerade diese Informationen von großer Bedeutung sind.
- Es ist keine Auflösung transienter Effekte möglich, welche speziell für die weitere Emissions-Optimierung der Motoren wünschenswert ist.
- Es können ausschließlich Messungen am Auspuff durchgeführt werden. Für die Entwicklung komplexer Abgasnachbehandlungssysteme sind allerdings Messungen an beliebigen Stellen im Abgasstrang nötig (z.B. vor DPF zur Bestimmung der Filtereffizienz)
- Die gravimetrische Bestimmung der Partikelmasse ist beeinflusst durch Filterartefakte (insbesondere Kondensation von Kohlenwasserstoffen), was speziell bei den zukünftig zu erwartenden niedrigen Grenzwerten zu erheblichen relativen Messfehlern führen kann ([17], [18]).
- Die Messprozedur (Filterhandling) ist sehr aufwändig und erfordert einen speziellen Wägeraum.

Im Folgenden soll deshalb auf die Erarbeitung einer alternativen Messmethodik eingegangen werden, welche möglichst alle genannten Anforderungen bei gleichzeitiger Vergleichbarkeit zu der herkömmlichen Methode erfüllt.

2.1.1 Evaluierung verfügbarer Messgeräte

Um eine im Vergleich zum herkömmlichen gravimetrischen Filter-Messverfahren erweiterte Analyse der PM-Emissionen zu ermöglichen, ist der Einsatz neuer Messtechniken erforderlich [19]. Dabei sind, wie bereits erläutert, besonders Messmethoden mit hoher Zeit- bzw. Größenauflösung von Interesse. Seit einiger Zeit sind verschiedenartige PM-Messgeräte kommerziell verfügbar, welche entweder die Partikel-Masse oder größen aufgelöste PM-Anzahlkonzentrationen mit jeweils hoher Abtastrate messen können. Um deren Eignung für ein zur Standard-Filtermethode alternatives Verfahren zu prüfen, wurden zwei Echtzeit PM-Masse Messgeräte und zwei dynamische Partikel-Größenspektrometer unter realen Testbedingungen untersucht. Ziel dieser Messkampagne war die Bewertung der gelieferten Messergebnisse insbesondere bezüglich Vergleichbarkeit zu den Standardverfahren, Reproduzierbarkeit und Nachweisgrenze. Zur Sicherstellung eines möglichst praxisorientierten Testprogramms erfolgten alle Messungen auf einem dynamischen Rollenprüfstand, wobei neben einem Combustion Aerosol Standard (CAST [20]) 5 verschiedene Diesel-Pkw mit unterschiedlichem PM-Emissionsverhalten (EU-3 bis EU-5) als Aerosolquelle genutzt wurden. Alle zu untersuchenden Messgeräte wurden dabei parallel zu den Standardmessverfahren (Filtermethode, CPC und SMPS) betrieben, um eine Bewertung der Vergleichbarkeit aller erhaltenen Messergebnisse zu ermöglichen. Die Ergebnisse der PM-Masse Messinstrumente wurden mit den entsprechenden Werten der Filtermessungen verglichen, wohingegen die von den Partikel-Spektrometern gelieferten Daten den entsprechenden Werten von CPC und SMPS gegenübergestellt wurden. Zusätzlich wurden, unter Verwendung unterschiedlicher Partikel-Dichtefunktionen PM-Massen aus den Daten der beiden Partikel-Spektrometer abgeleitet, und diese ebenfalls mit den zugehörigen Filterergebnissen verglichen.

2.1.1.1 Messgeräte und Messaufbau

Folgende Aerosol-Messgeräte wurden während der Messkampagne untersucht:

- *Differential Mobility Spectrometer* (DMS500, Combustion [21]), welches PM-Größenspektren im Größenbereich von 5 – 1000 nm mit einer Zeitauflösung von 200 ms (T_{90} -Zeit) misst. Die Größenauflösung beträgt 16 Kanäle je Dekade, wobei die Größenklassifikation auf Basis der elektrischen Mobilität (D_p) der Partikel unter

Verwendung des Elektrometer-Prinzips erfolgt. Maximale Datenausgaberate ist 10 Hz. Das DMS besitzt ein integriertes 2 stufiges Verdünnungssystem.

- *Engine Exhaust Particle SizerTM* (EEPS3090TM, TSI Inc. [22]), welches ebenfalls die auf dem Elektrometer-Prinzip basierende Messung von Partikel-Größenspektren mit hoher Zeitauflösung ermöglicht. Der messbare Partikel-Größenbereich reicht von 5.6 – 560 nm (Elektromobilitäts-Durchmesser D_p), bei einer Auflösung von 16 Kanälen je Dekade. Die maximale Datenausgaberate beträgt 10 Hz.
- *Dekati Mass Monitor* (DMM230, Dekati Ltd. [23]) als ein Echtzeit PM-Masse Messinstrument, welches durch Partikelaufladung, Dichtemessung, Klassifizierung mittels gröbenselektiver Trägheitsimpaktion mit anschließender elektrischer Detektion der Partikelladungen eine PM Massebestimmung erlaubt. Der abgedeckte Partikel-Größenbereich beträgt 10 – 1500 nm. Die max. Zeitauflösung ist mit < 5 s spezifiziert.
- *Micro Soot Sensor* (AVL483, AVL Corp. [24]), welcher auf dem photoakustischen Effekt basiert und die dynamische Messung der Massekonzentration von Kohlenstoffpartikeln (carbon black) mit ca. 1 Hz Zeitauflösung erlaubt.

Als Referenz für die Evaluierung der zu untersuchenden Instrumente wurden folgende etablierte Messverfahren bzw. Geräte eingesetzt:

- *Gravimetrische Filtermessungen* [16] entsprechend der gesetzlich vorgeschriebenen Prozedur zur Bestimmung der insgesamt über den Fahrzyklus emittierten Partikelmasse. Die gesammelten Filterproben wurden nach der Wägung zusätzlich auf Sulfat- und Nitratgehalt (Ionenchromatographie) sowie auf volatile organische Substanzen (VOF, mittels Gaschromatographie) hin analysiert.
- *Scanning Mobility Particle SizerTM* (SMPSTM3934, TSI Inc.), welches aus einem elektrostatischen Klassifizierer (*DMA TSI3071A*) und einem *TSI3022A CPC* bestand. Damit war die Messung von Partikel-Größenverteilungen auf Basis der Elektromobilität möglich. Als Scan-Zeit wurden 300 s gewählt. Der messbare Größenbereich ergab sich zu $7 \text{ nm} < D_p < 300 \text{ nm}$ mit einer Auflösung von 64 Kanälen pro Dekade. Aufgrund der langen Scan-Zeit wurde das SMPS ausschließlich zur Messung während Konstantfahrten genutzt.

- *Condensation Particle Counter* (CPC3010, TSI Inc.) zur Messung der Gesamt-Partikelanzahl im Bereich von 10 nm – 3 µm. Die Abtastrate betrug 1 Hz.

Eine schematische Darstellung der Messanordnung ist in Abbildung 2-1 zu sehen. Zur besseren Veranschaulichung befindet sich außerdem ein Foto des Aufbaus im Anhang (s. Abbildung A-1).

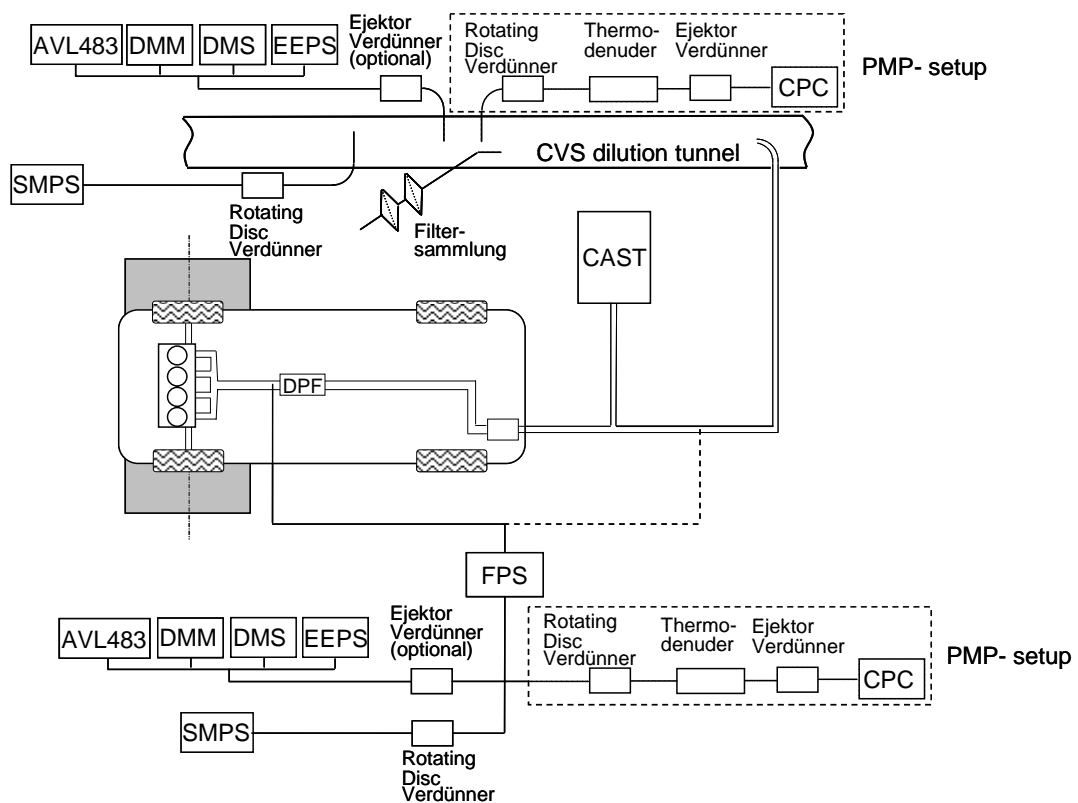


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung des Messaufbaus zur Messgeräteevaluierung am Rollenprüfstand.

Bei der Mehrheit der durchgeführten Tests wurde für die primäre Verdünnung des Abgas-Aerosols der Vollstrom-Verdünnungstunnel (CVS, durchschnittliches Verdünnungsverhältnis ca. 1:10) des Rollenprüfstandes genutzt. Zum Abgastransport vom Auspuff zum CVS-Tunnel fand dabei ein auf ca. 120 °C beheizter Edelschlauch Anwendung. In einigen Fällen, insbesondere bei Fahrzeugen mit höherem PM-Emissionsniveau, war eine sekundäre

Verdünnung notwendig, um die PM-Konzentrationen an die Messbereiche der Instrumente anzupassen. Dazu kamen optional ein Dekati FPS [25] oder ein Ejektor-Verdünner [26] zum Einsatz. Um die von den Echtzeit-Instrumenten gemessenen (DMM, AVL) bzw. berechneten (EEPS, DMS) PM-Massen zu beurteilen, wurden die entsprechend des gesetzlich vorgeschriebenen Verfahrens gesammelten Filterproben herangezogen. Da der AVL Micro Soot Sensor ausschließlich Ruß detektiert, wurden zum Vergleich mit den Filter-Werten die durch chemische Filteranalyse (GC/IC) bestimmten Sulfat-, Nitrat-, VOF- und sulfatgebundenen Wasseranteile (1.3*Sulfat) von den entsprechenden Filter-Gesamtmassen subtrahiert. Die so erhaltene Differenz wurde dann als auf dem Filter gesammelte Rußmasse angenommen, und mit den AVL Micro Soot Sensor Daten verglichen. Während der Messungen am CVS Verdünnungstunnel wurde der CPC als Teil eines PMP (particle measurement program)-Aufbaus betrieben. Dabei erfolgte eine weitere Verdünnung des aus dem CVS-Tunnel entnommenen Aerosols mittels Rotationsverdünner (Matter Engineering AG, Verdünnung ca. 1:220), anschließende thermische Konditionierung in einer Heizstrecke (280°C, Aufenthaltszeit ca. 1 s, Fluss ca. 4 l/min, [27]), eine dritte Verdünnung (Ejektor-Verdünner) und darauffolgende Messung der Partikel-Anzahlkonzentration durch den CPC. Diese Konfiguration wurde verwendet, da damit dem durch die GRPE-PMP Arbeitsgruppe empfohlenen Aufbau [28] gefolgt wird, welcher eine stabile und reproduzierbare PM-Anzahlmessung im Abgasaerosol sicherstellen soll. Aufgrund der Tatsache, dass keine signifikante Anzahl an Nukleationspartikeln im CVS-Tunnel beobachtet wurde, ist die Vergleichbarkeit zwischen den Anzahl-Messwerten von DMS und EEPS (ohne thermische Konditionierung) mit den CPC-Daten (mit thermischer Konditionierung) sichergestellt.

Um speziell das dynamische Verhalten der getesteten Messgeräte zu untersuchen, kamen während der Fahrzeugtests überwiegend transiente Fahrzyklen zum Einsatz, wobei sowohl NEDC Tests als auch spezielle transiente Zyklen durchfahren wurden. Die Bewertung der von EEPS und DMS gelieferten Größenverteilungen auf Basis entsprechender SMPS-Daten konnte aufgrund der mangelnden Dynamik des SMPS-Systems nur während stationärer Fahrzustände erfolgen. Um dabei die Untersuchung verschiedenartiger Aerosol-Größenverteilungen zu ermöglichen, wurden, unter Verwendung des FPS-Verdünners, Messungen sowohl vor- als auch nach DPF durchgeführt.

Während der gesamten Messkampagne wurde das DMS ohne Verwendung des integrierten 2 stufigen Verdünnungssystems betrieben. Hierzu wurde die erste Verdünnungsstufe (integriert in die beheizte Probenahmeleitung) nicht angeschlossen, und die sekundäre Verdünnungsstufe

durch festlegen des Verdünnungsfaktors auf 1 deaktiviert. Dieses Vorgehen wurde gewählt, da hier schwerpunktmäßig die Partikeldetektion (ohne Verdünnungseinfluss) untersucht werden sollte, und somit sichergestellt war, dass alle getesteten PM-Messinstrumente dasselbe Aerosol zur Analyse erhalten.

Alle nachfolgend dargestellten Werte wurden mit dem jeweiligen Gesamt-Verdünnungsfaktor multipliziert, und repräsentieren somit die PM-Konzentrationen im Rohabgas.

2.1.1.2 PM-Anzahl Korrelation

Da bei EEPS und DMS die Messung der Größenverteilung bzw. Partikel-Anzahl auf Basis des mehrstufigen Elektrometerprinzips erfolgt, wodurch geräteintern komplexe Korrekturen der Rohsignale erforderlich sind, ist der Abgleich zu CPC-Messungen, welche auf der direkten Zählung einzelner Partikel beruhen, ein wichtiger Aspekt. Um die Korrelation diesbezüglich zu untersuchen, wurden EEPS, DMS und CPC (PMP-setup) parallel am Verdünnungstunnel betrieben. Zur Abdeckung eines möglichst breiten Anwendungsspektrums wurden sowohl transiente als auch stationäre Messungen mit verschiedenen Fahrzeugen sowie unter Verwendung des Aerosolstandards (CAST) durchgeführt. Die daraus resultierenden Daten sind in Abbildung 2-2 aufgetragen.

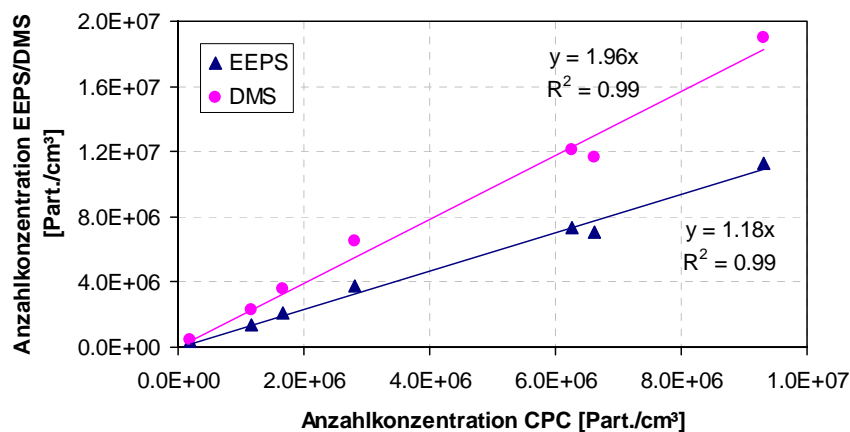


Abbildung 2-2: *Vergleich der gemittelten PM-Anzahlkonzentrationen von EEPS und DMS mit entsprechenden CPC Daten für stationäre und transiente Fahrzyklen.*

Alle darin gezeigten Datenpunkte repräsentieren die über den jeweiligen Fahrzyklus bzw. die jeweilige Konstantfahrt ermittelten durchschnittlichen PM-Anzahlkonzentrationen. Die über einen weiten Konzentrationsbereich gute Korrelation der gemessenen PM-Anzahlen zwischen CPC und den beiden Partikel-Größenspektrometern zeugt von guter Linearität und Reproduzierbarkeit der EEPS und DMS Messungen. Beim Vergleich der absoluten Werte zeigen sich jedoch besonders zwischen CPC und DMS erhebliche Abweichungen. Die etwa um den Faktor 2 erhöhten DMS-Werte wurden während aller Messungen beobachtet. Nach gemeinsamer Prüfung mit dem Hersteller, sowie aufgrund der sehr guten Korrelation zu den EEPS- bzw. CPC-Daten wird als plausible Ursache die Verwendung unterschiedlicher Standards zur Kalibrierung von CPC/EEPS bzw. DMS angenommen. Eine mögliche Erklärung für die ca. 18%ige Abweichung der EEPS-Daten von den entsprechenden CPC-Werten könnten die nicht korrigierten thermophoretischen Verluste durch die dem CPC vorgeschaltete Heizstrecke sein. Um die Übersichtlichkeit in den folgenden Abbildungen zu erhöhen, wurden alle weiteren DMS-Daten durch Multiplikation mit dem Faktor 1/1.7 (Anstieg aus Korrelation EEPS/DMS) angepasst.

2.1.1.3 Vergleich der Größenverteilungen

Um eine Bewertung der von EEPS und DMS gelieferten Größenverteilungen auf Basis von SMPS-Daten zu ermöglichen, wurden Messungen während stationärer Motorbetriebszustände (Konstantfahrten) bzw. am CAST durchgeführt. Die Benutzung des CAST als Aerosolquelle bot dabei die Möglichkeit der Vorwahl des Größenverteilungs-Medians (CMD), und ermöglichte somit Messungen in verschiedenen Partikelgrößenbereichen. In Abbildung 2-3 sind Beispiele typischer gemessener Größenverteilungen des CAST-Aerosols zu sehen.

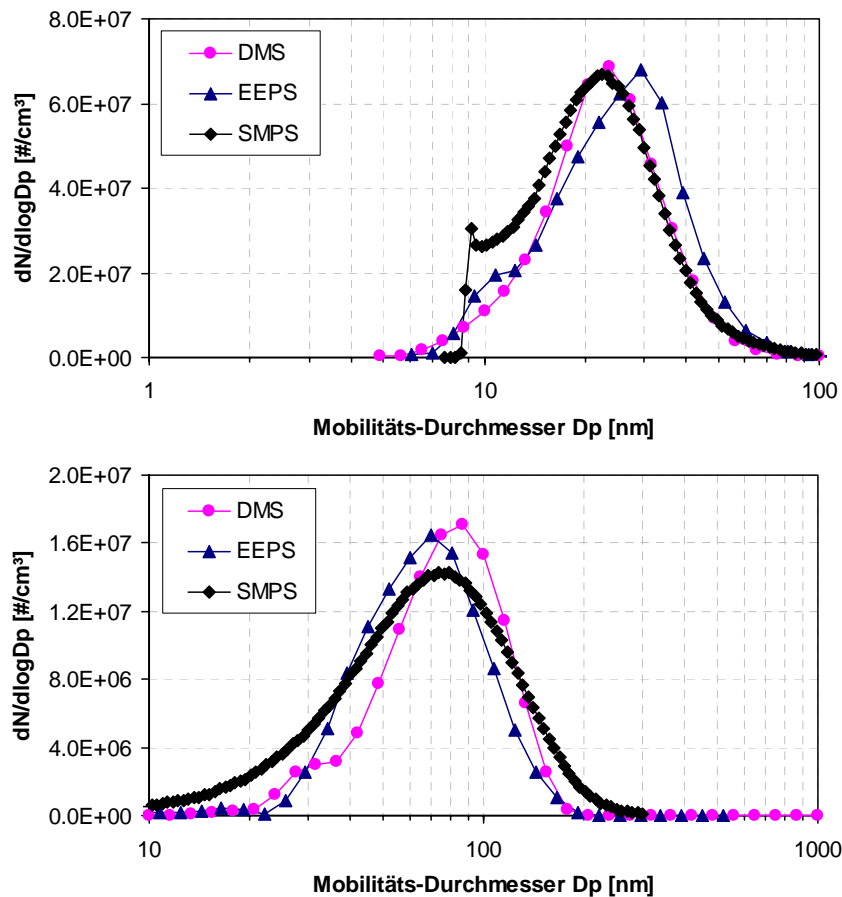


Abbildung 2-3: *Vergleich der mittleren Größenverteilungen von DMS, EEPS und SMPS für Combustion Aerosol Standard (CAST)-Aerosol mit vorgewählten count median diameter (CMD) von 21 (oben) und 82 nm (unten).*

Zwei verschiedene CAST-Einstellungen wurden verwendet, um Partikelgrößenverteilungen mit einem CMD von 21 nm (Abb. 2-3 oben) sowie 82 nm (Abb. 2-3 unten) zu erzeugen. Die abgebildeten Größenverteilungen repräsentieren die jeweils für SMPS, EEPS und DMS über 800 s gemittelten Werte. Alle drei Instrumente zeigen dabei einen vergleichbaren Trend, wobei leichte Abweichungen bezüglich CMD sowie Breite und Form der gemessenen Größenverteilungen sichtbar werden. EEPS und DMS zeigen schmalere Verteilungen verglichen zum SMPS. Ein Grund dafür könnte die komplexe unipolare Partikel-Aufladung bei EEPS bzw. DMS sein, welche im Vergleich zum bipolaren Aufladungsprinzip des SMPS weniger genau modelliert ist. Ein ähnliches Verhalten wurde auch von Symonds et al. [29] beobachtet. Daraus resultierend geben EEPS und DMS an den Randbereichen der Größenverteilungen (große und kleine Partikel) im Vergleich zum SMPS eine zu geringe Partikelanzahl an. Für eine genauere Untersuchung der Größenklassifizierung wurden die

sowohl bei Fahrzeug- als auch während der CAST-Tests gemessenen Rußmode-CMD's gegenübergestellt. Das Ergebnis ist in Abbildung 2-4 zusammengefasst.

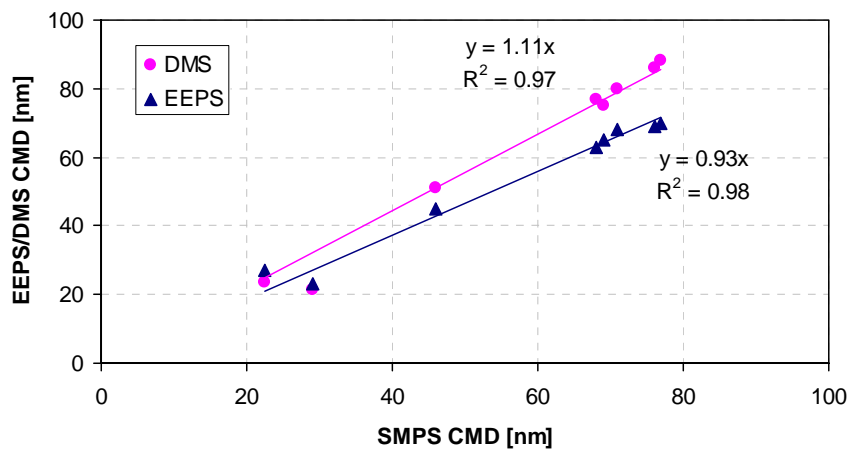


Abbildung 2-4: Vergleich der count median diameter (CMD) von EEPS und DMS mit entsprechenden SMPS Werten für Rußmode-Partikel verschiedener Motoren und Combustion Aerosol Standard (CAST)-Partikel.

Die gezeigten Daten wurden während Messungen sowohl vor DPF, am Auspuff, als auch an CVS und am CAST aufgenommen. Für alle gemessenen Größenverteilungen (Testmittelwerte) erfolgte jeweils die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung. Bei Messung einer bi-modalen Verteilung wurde aufgrund der Instabilität der Nukleationsmode nur die Rußmode berücksichtigt. Aus den approximierten logarithmierten Normalverteilungen konnten dann die in Abbildung 2-4 dargestellten CMDs entnommen werden. Insgesamt zeigen sowohl EEPS-Daten als auch die Werte des DMS gute Korrelation zu den SMPS-Ergebnissen. Beim Vergleich der Absolutwerte ergaben sich Abweichungen zum SMPS von ca. +11 % für das DMS, wobei vom EEPS systematisch ca. 7 % kleinere CMDs angegeben wurden. In Anbetracht der unterschiedlichen Messprinzipien der verglichenen Geräte und der Komplexität des untersuchten Messproblems können diese Abweichungen als akzeptable Werte betrachtet werden.

Um eine stichprobenartige Prüfung der unter transienten Bedingungen von EEPS und DMS gemessenen Größenverteilungen vorzunehmen, wurden die beiden Partikel-Spektrometer parallel an einer Messstelle vor einem DPF betrieben. Zur Verdünnung wurde das FPS genutzt, wobei keine Heizung von erster Verdünnungsstufe und Verdünnungsluft erfolgte. Durch die Verbindung dieser nukleationsfördernden Verdünnung mit dem transienten NEDC-

Zyklus wurde temporär die Bildung von Nukleationspartikeln im verdünnten Rohabgas erreicht. Dadurch war ein Vergleich zwischen EEPS und DMS unter transienten Bedingungen sowohl bezüglich fester Rußpartikel als auch im Hinblick auf die flüchtigen Nukleationspartikel möglich. Da die von herkömmlichen Pkw-Dieselmotoren emittierten Rußpartikel bezüglich ihrer Größe konzeptunabhängig recht konstante Werte aufweisen (40 – 100 nm, [30]), bot die „Erzeugung“ von Nukleationspartikeln (< 20 nm) außerdem eine gute Möglichkeit den EEPS/DMS-Vergleich auf einen breiteren Partikel-Größenbereich auszudehnen. Das Ergebnis der Gegenüberstellung von EEPS und DMS ist in Abbildung 2-5 zu sehen. Das SMPS konnte aufgrund seiner vergleichsweise geringen Messdynamik während dieses transienten Tests nicht einbezogen werden.

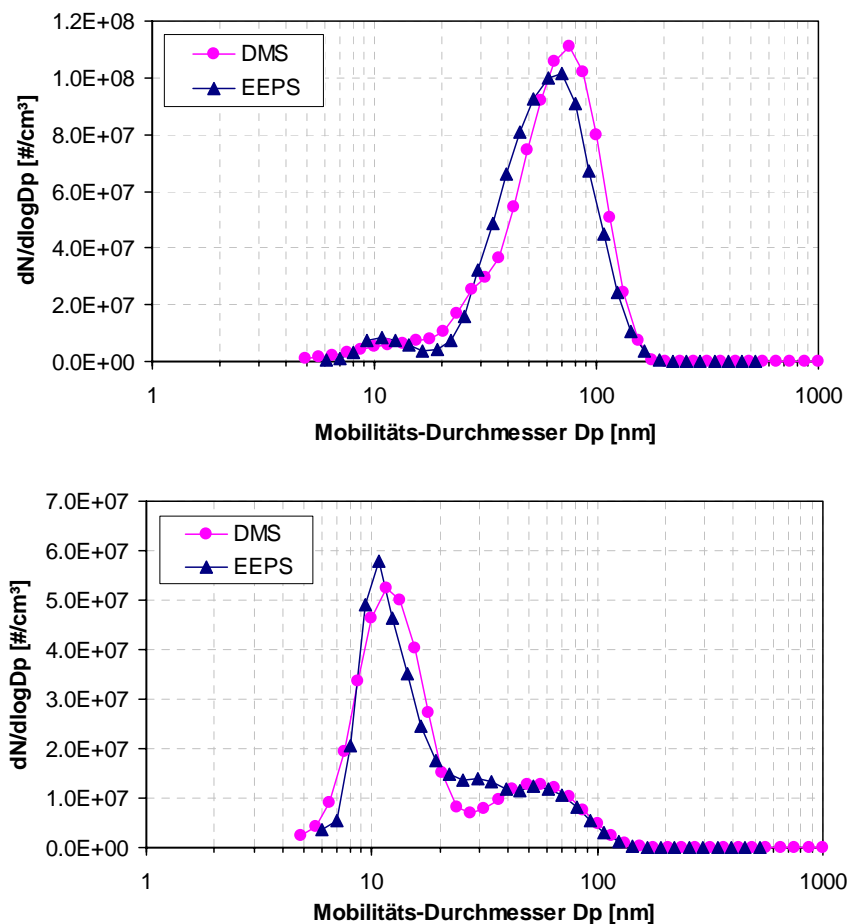


Abbildung 2-5: Vergleich der mittleren Größenverteilungen von DMS und EEPS für Ruß- (oben) und Nukleationspartikel (unten). Die Messungen erfolgten beim Beschleunigen (oben) und im Schubetrieb (unten) während eines NEDC.

Im oberen Diagramm von Abbildung 2-5 sind die über mehrere Beschleunigungen gemittelten Größenverteilungen, welche während eines NEDC parallel von EEPS und DMS gemessen wurden, dargestellt. Darin zeigen beide Instrumente in guter Übereinstimmung die für hohe Motorlasten typische Rußmode. Gute Übereinstimmung besteht auch bei den durchschnittlich während des Schubbetriebes gemessenen Größenverteilungen (Abb. 2-5, unteres Diagramm), wobei die Beobachtung von Nukleationspartikeln während dieser Motor-Betriebszustände durch frühere Studien ([31], [32]) bestätigt wird. Die im Vergleich zum DMS bereits unter stationären Bedingungen festgestellte Tendenz des EEPS hin zu kleineren CMD's (s. Abbildung 2-4) ist auch in den transienten Messungen wieder zu finden.

Insgesamt kann somit festgestellt werden, dass EEPS und DMS die konsistente Messung von PM-Anzahlverteilungen und daraus abgeleiteten PM-Anzahlen mit guter Linearität und Wiederholbarkeit ermöglichen. Dabei zeigen beide Partikel-Spektrometer gute Übereinstimmung unter sowohl stationären als auch transienten Bedingungen. Im Vergleich zum SMPS werden allerdings die PM-Anzahlen insbesondere an den Größenbereichsrändern etwas unterrepräsentiert.

2.1.1.4 PM-Masse Korrelation

Zur Evaluierung der von den untersuchten Geräten gelieferten PM-Masse Daten wurde die Standard-Filtermethode als Referenz herangezogen. Es wurden ausschließlich transiente Fahrzyklen (NEDC, dreifach-EUDC und spezieller Stadtfahrzyklus) untersucht, wobei die Probenahme am CVS-Verdünnungstunnel erfolgte. Bei einigen Tests war eine Nachverdünnung erforderlich, um die nötige Konzentrationsanpassung zu erreichen. Die jeweils über den gesamten Testzyklus integrierten PM-Massen wurden auf die entsprechenden Fahrstrecken bezogen, und die resultierenden Emissionsfaktoren miteinander verglichen.

In Abbildung 2-6 sind die Ergebnisse von DMM mit den entsprechenden Filter-Werten verglichen. Dabei wurde im Unterschied zum AVL Micro Soot Sensor die gesamte auf dem Filter gesammelte Partikelmasse zugrunde gelegt. Für die Micro Soot Sensor-Daten wurde die jeweilige Filter-Rußmasse (aus chem. Analyse, vgl. 2.1.1.1) zum Vergleich zugrunde gelegt. Sowohl gesamtmassebasierte als auch aus der Filter-Rußmasse berechnete Filter-Emissionsfaktoren sind auf derselben x-Achse aufgetragen. Der Unterschied zwischen beiden Werten betrug bei den hier dargestellten Untersuchungen typischerweise 5 bis 10%.

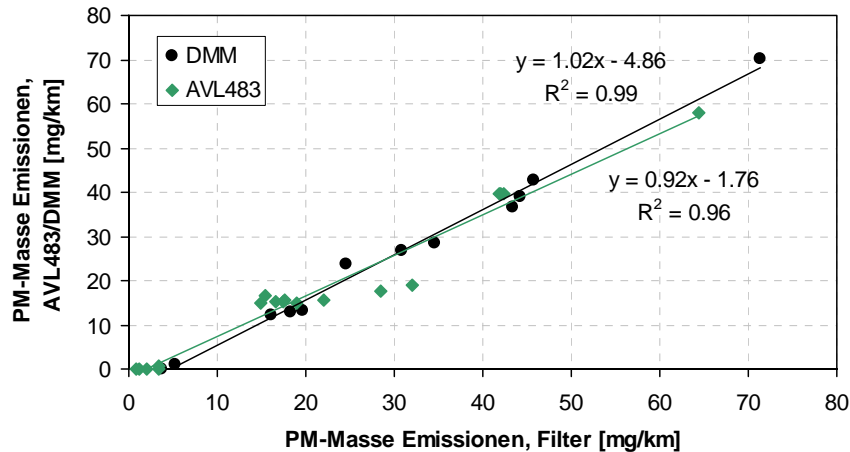


Abbildung 2-6: *Vergleich der berechneten PM-Masse Emissionsfaktoren für AVL483 (nur Rußpartikel-Masse) und DMM (gesamt PM-Masse) mit entsprechenden Filter-Werten für verschiedene Motorenkonzepte und Fahrzyklen.*

Sowohl DMM als auch der AVL Micro Soot Sensor geben zu den jeweils ermittelten Filter-Emissionsfaktoren vergleichbare Werte an (Steigungen der Regressionsgeraden nahe 1). Die im Allgemeinen gut ausgeprägte Korrelation wird teilweise durch größere Abweichungen gestört. Insbesondere im Bereich der kleinen Emissionsfaktoren unter 5 mg/km (EU-5 Bereich) zeigen sich teilweise signifikante Unterschiede zwischen den Filtermessungen und den Ergebnissen von DMM bzw. AVL Micro Soot Sensor. Verdeutlicht wird dies auch durch die negativen Ordinatenabschnitten der Regressionsgeraden. Dieses Verhalten deutet auf die Beeinflussung der Filtermessung durch Messartefakte hin. Solche Effekte wurden während Fahrzeugtests bereits häufig beobachtet, und werden z.B. in Chase et al. [33] genauer diskutiert. Es wird davon ausgegangen, dass besonders im Bereich der Gemischanreicherung, gasförmige Kohlenwasserstoffe aufgrund erhöhter Konzentrationen teilweise auf den Filtern kondensieren. Dadurch wird fälschlicherweise eine scheinbar höhere PM-Masse bei der anschließenden Filterwägung ermittelt. Vor dem Hintergrund der erwarteten strengeren Emissionsvorschriften (z.B. EU-5 [34]) wird diese Problematik vorrausichtlich Gegenstand weiterer Untersuchungen bzgl. alternativer Messverfahren sein. Der Umstand, dass auch beim Vergleich zwischen AVL Micro Soot Sensor-Daten und Filter-Rußwerten ein negativer Ordinaten Schnittpunkt der entsprechenden Regressionsgeraden auftritt, könnte u.a. auf nicht detektierte leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe während der GC zurückzuführen sein.

Im Folgenden soll die prinzipielle Möglichkeit der PM-Masseberechnung aus den von EEPS und DMS gelieferten Größenspektren geprüft werden. Dazu wurden die beiden PM-Größenspektrometer ebenfalls parallel zu den Filtersammlungen betrieben, und die resultierenden Größenverteilungen folgendermaßen in Emissionsfaktoren (EF) umgerechnet:

$$EF = \frac{\sum_{t=0}^{t_{end}} \left[\sum_{n_{min}}^{n_{max}} \frac{1}{16} \cdot \frac{4}{3} \pi \cdot \left(\frac{D_{p,n}}{2} \right)^3 N(D_{p,n}) \cdot \rho_{eff}(D_{p,n}) \right] \cdot DF_t \cdot V_{exh,t}}{Wegstrecke} \quad (1)$$

Worin $D_{p,n}$ der Partikel-Mobilitätsdurchmesser der Größenklasse n ; $N(D_{p,n})$ die Partikel-Anzahlkonzentration in $dN/d\log(D_p)$ in der Größenklasse n ; $\rho_{eff}(D_{p,n})$ die effektive Dichte der Partikel in der Größenklasse n ; $\sum_{n_{min}}^{n_{max}}$ die Summe über alle Größenklassen; DF_t der mittlere Gesamt-Verdünnungsfaktor im Zeitintervall t ; $V_{exh,t}$ das Abgasvolumen im Zeitintervall t ; $\sum_{t=0}^{t_{end}}$ die Summe über die gesamte Dauer des Fahrzyklusses und Wegstrecke den während des Fahrzyklusses zurückgelegten Weg bedeuten.

Da EEPS und DMS jeweils eine Größenauflösung von 16 Größenklassen je Dekade besitzen, muss mit dem Faktor 1/16 multipliziert werden um die normierten $dN/d\log(D_p)$ -Werte in tatsächliche PM-Anzahlkonzentrationen umzurechnen. Die Berechnung nach Gleichung (1) erfolgte mit einem Zeitschritt von 1/10 Sekunde, was der maximalen Datenausgaberate der beiden PM-Spektrometer entspricht. Durch Verwendung der effektiven Partikeldichte ρ_{eff} konnten die Partikel vereinfacht als sphärische Körper mit dem geometrischen Durchmesser D_p angesehen werden.

Da sich die von Pkw-Dieselmotoren emittierte PM-Gesamtmasse fast ausschließlich aus den Partikeln des Größenbereichs von ca. 30 bis 500 nm ergibt, ist eine Berücksichtigung der Größenbereichsunterschiede von EEPS und DMS beim Vergleich der berechneten Partikelmassen nicht notwendig. Entsprechend wurde der Massebeitrag von Partikeln mit $560 \text{ nm} < D_p < 1000 \text{ nm}$, welche nur vom DMS gemessen wurden, zu lediglich ca. 2.5% bestimmt. Die zur Berechnung der PM-Massen in Gleichung (1) benötigte Dichtefunktion $\rho_{eff}(D_p)$ wurde von Maricq et al. [35] abgeleitet, und ist im Anhang (Abbildung A-2) dargestellt. Diese für Rußmode-Partikel bestimmte Dichtefunktion basiert auf einer fraktalen Dimension von 2.3 und wurde z.B. von Park et al. [36] bestätigt. Zusätzlich wurden alle

Berechnungen für eine fiktive größenunabhängige Dichte von $\rho_{eff}(D_p) = 1 \text{ g/cm}^3$ ausgeführt, woraus als Ergebnis das Partikel-Gesamtvolumen (Annahme: sphärische Partikel) resultiert. In Abbildung 2-7 sind die für beide Dichtefunktionen berechneten PM-Emissionsfaktoren mit den entsprechenden Filter-Werten verglichen.

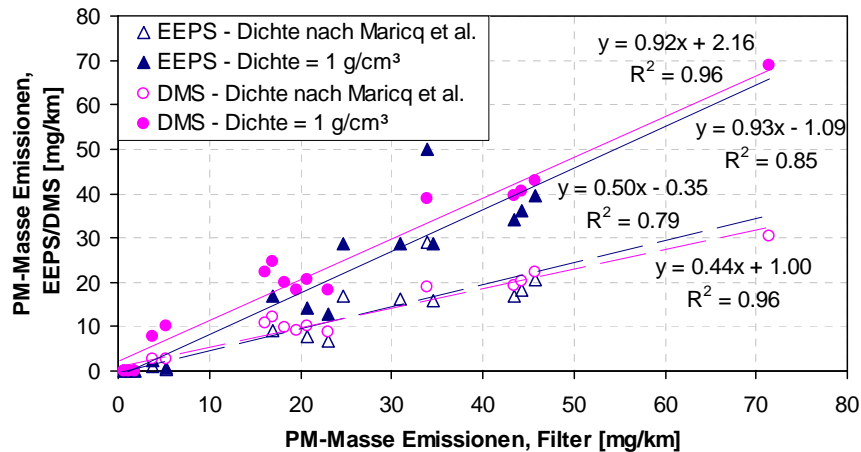


Abbildung 2-7: Vergleich der PM-Masse Emissionsfaktoren von EEPS und DMS mit den entsprechenden Filter-Werten. Werte der Partikel-Größenspektrometer wurden für jeweils zwei unterschiedliche Dichtefunktionen berechnet.

Das DMS zeigt für beide Dichtefunktionen eine gute Korrelation zu den Filtermessungen. Die Korrelation zwischen EEPS und Filter ist etwas schlechter, was auf geringfügige Unterschiede in den Größenverteilungen von DMS und EEPS zurückzuführen ist. Einen bedeutenden Einfluss stellt vermutlich die Morphologie der Partikel dar, welche aufgrund der Verwendung unterschiedlicher Testfahrzeuge möglicherweise Schwankungen unterworfen war. Akzeptable Übereinstimmung der absoluten Masse-Werte von EEPS/DMS und Filter-Daten konnte nur für die angenommene Dichtefunktion $\rho_{eff}(D_p) = 1 \text{ g/cm}^3$ erreicht werden. Diese Dichteannahme entspricht einer fraktalen Dimension von 3, welche unrealistisch für Dieselruß ist, aber nahe dem theoretischen Wert von 3.19 liegt, welcher von Symonds et al. [29] für die Masseberechnung aus DMS-Spektraldaten vorgeschlagen wird. Bei Verwendung der allgemein anerkannten Dieselruß-Dichtefunktion von Maricq et al. [35] werden die PM-Massen um ca. 50% unterschätzt. Als Grund dafür können insbesondere die bereits diskutierten Ungenauigkeiten in den EEPS/DMS-Größenverteilungen angeführt werden. Besonders die im Vergleich zum SMPS etwas zu gering bestimmten Anzahlen an großen Partikeln, was unter bestimmten Bedingungen auch von Kittelson et al. [37] beobachtet

wurde, haben dabei entscheidenden Einfluss. Aus dieser relativ kleinen Abweichung bei der Partikelanzahl ergibt sich ein deutlich verringertes Partikelvolumen (aufgrund der 3. Potenz in Gleichung (1)), was dann zur beobachteten Unterschätzung der PM-Masse führt.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass alle untersuchten Instrumente in der Lage waren, PM-Masse bzw. PM-Größenverteilungen mit hoher Zeitauflösung und Sensitivität zu messen. Obwohl bezüglich der Vergleichbarkeit von absoluten Werten teilweise größere Abweichungen zwischen den verschiedenen Verfahren beobachtet werden konnten, bieten alle getesteten Geräte eine sinnvolle Ergänzung zu den Standardverfahren um insbesondere zusätzliche Informationen zu Zeitverläufen bzw. transienten Größenverteilungen zu erhalten.

2.1.2 Entwicklung und Bewertung eines neuen Probenahmekonzeptes

Bei der Untersuchung des Abgasaerosols von Verbrennungsmotoren ist eine Verdünnung des Rohabgases notwendig. Als Hauptgründe dafür sind insbesondere die Anpassung der hohen Rohkonzentrationen an die Messbereiche der verwendeten Messinstrumente, Abkühlung des Abgases unter Verhinderung der Auskondensation von gasförmigen Komponenten (insbesondere Wasser) und die Unterdrückung von unerwünschten Prozessen wie z.B. Koagulation und chemische Reaktionen zu nennen [38].

Aus den unter 2.1 genannten Punkten lassen sich als Grundanforderungen an das zu entwickelnde Verdünnungsverfahren speziell die zuverlässige Funktion bei Druck- und Temperaturschwankungen (z.B. für transiente Messungen vor DPF) sowie die Möglichkeit der flexiblen Abgasentnahme an beliebigen Stellen des Abgassystems ohne Rückwirkung auf dieses (z.B. durch Entnahme eines zu großen Abgas-Volumenstromes) ableiten. Zwar sind bereits Verdünnungssysteme verfügbar, welche eine Verdünnung bei schwankenden Probendrücken und Temperaturen ermöglichen. Allerdings weisen die beiden für den hier zu untersuchenden Anwendungsfall relevanten Verdüner einige Nachteile auf. So arbeitet die von AVL angebotene Konditioniereinheit ausschließlich in Verbindung mit dem AVL Micro Soot Sensor [39], womit die Messung von PM-Anzahl bzw. Größenverteilungen nicht möglich ist. Das von Dekati erhältliche FPS [25] ist zwar messgeräteunabhängig betreibbar, weist aber einen sehr komplexen Aufbau auf, wodurch dessen Anwendung im alltäglichen Prüfstandsbetrieb nur eingeschränkt möglich ist. Nach grundlegender Untersuchung mehrerer möglicher Alternativansätze wurde das Ejektor-Prinzip als neue Basis ausgewählt, welches aufgrund des vergleichsweise einfachen Aufbaus ohne bewegliche Teile eine zuverlässige und

stabile Arbeitsweise ermöglicht. Ein weiterer Vorteil dieser Variante ergibt sich aus der Verfügbarkeit der weit verbreiteten Ejektor-Verdüner, wodurch eine teure Neuanschaffung eines zusätzlichen Verdünnungssystems entfällt. Für den hier zu untersuchenden speziellen Anwendungsfall sind allerdings Druck- und Temperaturschwankungen des zu messenden Abgases zu berücksichtigen, was die Entwicklung einer neuen Methodik erforderlich macht.

2.1.2.1 Grundlagen und Modellierung des Ejektor-Verdünnungssystems

Die in diesem Kapitel beschriebenen Untersuchungen wurden unter Verwendung von kommerziell erhältlichen Dekati Ejektor-Verdünnern (DI-1000, Dekati Ltd. [26]), welche weitverbreitete Anwendung in der Abgasaerosol-Messtechnik finden, durchgeführt. Das abgeleitete Verfahren ist jedoch grundsätzlich auf alle Verdüner welche das Ejektor-Prinzip nutzen anwendbar. Abbildung 2-8 zeigt den prinzipiellen Aufbau eines solchen Verdüners.

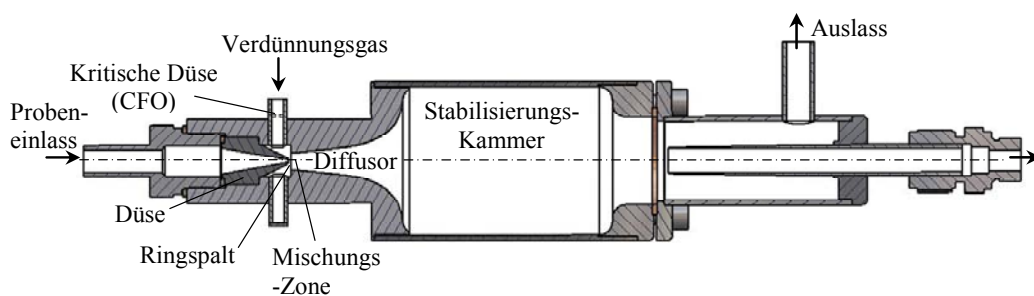


Abbildung 2-8: Schematische Darstellung eines typischen Ejektor-Verdüners.

Das Kernelement ist die Ejektor-Pumpe. Diese besteht im Wesentlichen aus einer Düse, die von einem Ringspalt umgeben ist. Danach schließt sich eine Mischungszone gefolgt von einem Diffusor an. Im Fall des hier verwendeten Verdüners ist die zentrale Düse mit dem Probeneinlass verbunden. Das Verdünnungsgas (z.B. Druckluft oder komprimierter Stickstoff) fließt durch den Ringspalt. Dieser Pumpeinheit folgt die Stabilisierungskammer in welche die Auslässe münden.

Das Grundprinzip beruht auf der kontinuierlichen Durchströmung bei gleichzeitiger Mischung der beiden Gasströme. Dabei erfolgt ein Ansaugen des Proben-Aerosols durch die kinetische Energie des Verdünnungsgases. Aufgrund der starken Beschleunigung des expandierenden Verdünnungsgases kommt es hinter dem Ringspalt zu einem Druckabfall, welcher das

Ansaugen des Probenstromes durch die Düse bewirkt. Durch Impulsaustausch zwischen beschleunigtem Verdünnungsgasstrom und dem Probenfluss erfolgt dann eine Durchmischung der beiden Fluide in der Mischungszone. Bei anschließender Durchströmung des Diffusors wird ein Teil der kinetischen Energie wieder in einen Anstieg des statischen Druckes umgesetzt. Da die Stabilisierungskammer über die Auslässe mit der Umgebung verbunden ist, erfolgt dort eine weitere Druckanpassung des Gasgemisches an Umgebungsdruck.

Der Verdünnungsfaktor (DF) ermöglicht die Rückrechnung der im verdünnten Aerosol gemessenen Konzentrationen auf die entsprechenden Rohwerte. Er gibt die Reduktion der ursprünglich im Probenfluss vorliegenden Konzentration einer beliebigen Komponente um den Faktor $1/DF$ an, und lässt sich aus den Gasflüssen wie folgt berechnen:

$$DF = \frac{Q_{total}}{Q_{sample}} = \frac{Q_{sample} + Q_{dilution}}{Q_{sample}} \quad (2)$$

Mit: Q_{sample} = Probenfluss
 $Q_{dilution}$ = Verdünnungsgasfluss

Da hier die Verdünnungsdefinition über die Konzentration erfolgt, ist es notwendig dichteunabhängige Flüsse zu verwenden. Deshalb werden nachfolgend alle Fluidströme als SLPM (Standard-Liter pro Minute, d.h. Volumenstrom bei 1013 mbar und 25°C) angegeben, wodurch gleichzeitig Masseströme repräsentiert werden.

Typische Verdünnungsfaktoren der hier beschriebenen Ejektor-Verdünner liegen bei Standardbedingungen (Ein- und Auslasseitig) um ca. 10. Die Grundcharakteristik wird dabei hauptsächlich durch die geometrischen Verhältnisse von Düse und Ringspalt bestimmt. Aufgrund der speziellen Arbeitsweise gibt es jedoch weitere Einflussfaktoren, welche beträchtliche Abweichungen zum spezifizierten Verdünnungsfaktor hervorrufen können. Insbesondere sind dies:

- Probendruck
- Temperatur des Proben-Aerosols

- Druck am Verdünnerauslass
- Temperatur des Verdünnergehäuses
- Druck und Temperatur des Verdünnungsgases
- Verschmutzungsgrad der Düse
- Zusammensetzung der zu mischenden Fluide

Beim Einsatz der Verdüner in der Abgasmesstechnik kommt es besonders durch Druck- und Temperaturschwankungen im zu verdünnenden Abgas (z.B. in Abhängigkeit von Messstelle und Motorbetriebszustand) zu transienten Veränderungen des Verdünnungsfaktors, wodurch die Ermittlung des tatsächlichen Verdünnungsverhältnisses eine Herausforderung darstellt. Um Nukleation oder Kondensation gasförmiger Abgaskomponenten (insbes. Wasserdampf) vor der Verdünnung zu verhindern, ist es vorteilhaft sowohl das Verdünnungsgas als auch das Gehäuse des Verdünners zu beheizen. Diese erhöhten Temperaturen führen zu einer zusätzlichen Abweichung vom erwarteten Verdünnungsfaktor, und sollten somit ebenfalls berücksichtigt werden. Die kritische Größe dabei ist der Probenahmefluss. Aufgrund der Abgaseigenschaften, insbesondere des Wasser und Rußgehaltes ist eine präzise direkte Messung kaum realisierbar. Deshalb beruhen nahezu alle derzeit angewendeten Verfahren entweder auf der Benutzung des Standard-Verdünnungsfaktors ([40], [41]), oder auf der Abschätzung des tatsächlichen Probenahmeflusses ([42], [43]) bzw. auf der Verwendung von z.B. NO_x als Tracergas ([44], [45]).

Zielstellung hier ist die Entwicklung einer angepassten, einfach anwendbaren und robusten Methode zur möglichst genauen zeitaufgelösten Bestimmung des Verdünnungsfaktors bei allen zu erwartenden Abgaszuständen. Um die relevanten Einflussfaktoren einzubeziehen, wurde ein einfaches stationäres Modell entwickelt, welches auf folgenden Annahmen basiert:

- Der Durchfluss durch die Ejektor-Düse kann mittels entsprechender Grundgleichungen aus der Fluidmechanik beschrieben werden.
- Der Verdünnungsgasfluss (Q_{dilution}) ist bekannt und konstant (da Vordruck und Temperatur konstant).
- Der Druck am Verdünnerauslass (P_{outlet}) entspricht ca. Umgebungsdruck und schwankt maximal um ± 10 mbar.
- Der Druckabfall über die Ejektor-Düse wird durch die Druckdifferenz über den Verdüner (ΔP) repräsentiert.

- Schwankungen der Proben-Eingangstemperatur haben keinen Einfluss auf die Temperatur der Verdünnerenteile, da sowohl Verdünnungsgas als auch Verdünner auf ca. 200°C geheizt werden.

Für die Berechnung des Verdünnungsfaktors DF nach Gleichung (2) werden der Verdünnungsgasfluss sowie der Probenfluss benötigt. Dabei kann der Verdünnungsgasfluss nach obiger Modellannahme als bekannt vorausgesetzt werden. Für die Berechnung des Probenflusses durch die Ejektor-Düse müssen grundsätzlich zwei Zustände unterschieden werden:

1. Unterkritischer Fluss, welcher sich bei niedrigen Druckdifferenzen über der Düse ausbildet, wobei gilt: $P_1 \leq 1.89 \cdot P_2$, mit $P_1 =$ statischer Druck vor der Düse und $P_2 =$ statischer Druck hinter der Düse
2. Kritischer Fluss, welcher sich bei höheren Druckdifferenzen mit $P_1 > 1.89 \cdot P_2$ ausbildet

Unterkritischer Fluss

Basierend auf der Bernoulli-Gleichung und der Kontinuitätsgleichung kann der Massefluss durch eine Düse allgemein wie folgt beschrieben werden [46]:

$$\dot{m} = C \cdot \varepsilon_1 \cdot \frac{D^2}{\sqrt{D^4 - d^4}} \cdot \frac{\pi}{4} d^2 \cdot \sqrt{2 \cdot (P_1 - P_2) \cdot \rho} \quad (3)$$

Mit: $\dot{m} = dm/dt$ = Massefluss durch die Düse; C = geometrieabhängiger Durchflusskoeffizient; ε_1 = Expansionszahl, berücksichtigt die Dichteänderung des Fluids innerhalb der Düse; D = geometrischer Durchmesser am Einlass der Düse; d = geometrischer Durchmesser am Auslass der Düse; $P_1 - P_2$ = Differenz der statischen Drücke vor- und nach der Düse und ρ = Dichte des in die Düse eintretenden Fluids.

Bei unterkritischer Strömung nimmt die Fluidgeschwindigkeit in der Düse mit steigender Druckdifferenz $P_1 - P_2$ zu, welches zu einem Anstieg des Masseflusses führt (Wurzel-Zusammenhang). Zusätzlich ist der Massefluss durch die Düse proportional zur Wurzel der Fluidichte. Um diesen Dichteinfluss bei der Verdünnung zu berücksichtigen, müssen sowohl die Proben temperatur als auch der Probedruck in die Berechnung einbezogen werden. Nach dem idealen Gas Gesetz kann die Dichte des Probengases wie folgt ausgedrückt

werden: $\rho_{sample} = \frac{m_{sample}}{V_{sample}} = \frac{P_{sample}}{R \cdot T_{sample}}$ wobei R die universelle Gaskonstante ist. Folglich ist der Probenfluss proportional zu $\sqrt{P_{sample}/T_{sample}}$. Die Proportionalitätskonstante $\sqrt{R^{-1}}$ und der Term $C \cdot \varepsilon_1 \cdot \frac{D^2}{\sqrt{D^4 - d^4}} \cdot \frac{\pi}{4} d^2$, welcher ausschließlich verdünnerspezifische Konstanten enthält, können in einem Faktor zusammengefasst werden. Dieser Faktor, im Folgenden mit A_1 bezeichnet, wird bei den jeweiligen Verdünnern für alle untersuchten Drücke und Temperaturen im Bereich des unterkritischen Flusses als konstant vorausgesetzt. Für konstante Verdünnern-Auslassdrücke nahe Umgebungsdruck muss eine Einbeziehung des absoluten Probedruckes nicht direkt im Dichteterm erfolgen. Dieser Einfluss kann in diesem Fall auch durch Anpassung von A_1 berücksichtigt werden. Eine weitere Vereinfachung kann erreicht werden, indem anstelle der schwierig messbaren Düsen-Druckdifferenz $P_1 - P_2$ der Druckabfall über dem Verdünnern zu Grunde gelegt wird. Dazu wird $P_1 - P_2$ aus Gleichung (3) durch $\Delta P - \Delta P_{min}$ ersetzt, wobei $\Delta P = P_{sample} - P_{outlet}$ bedeutet. ΔP_{min} berücksichtigt den lokalen Druckabfall hinter der Düse, welcher durch das expandierende Verdünnungsgas hervorgerufen wird. Mit dieser Ersetzung und Einsetzen von A_1 in Gleichung (3) folgt als Transferfunktion für den Bereich des unterkritischen Flusses:

$$Q_{sample} = \frac{A_1}{\sqrt{T_{sample}}} \cdot \sqrt{\Delta P - \Delta P_{min}} \quad (4)$$

Damit kann mit Hilfe des bekannten Verdünnungsgasflusses $Q_{dilution}$ die tatsächliche Verdünnung entsprechend aus Gleichung (2) berechnet werden. Der Faktor A_1 , ΔP_{min} und $Q_{dilution}$ müssen während der Kalibrierung für jeden Verdünnern separat bestimmt werden. Die Eingangsgrößen zur Ermittlung von Q_{sample} sind T_{sample} und ΔP , welche während der Verdünnung gemessen werden.

Kritischer Fluss

Bei kritischer Strömung fließt das Fluid etwa mit Schallgeschwindigkeit durch die Düse. Eine weitere Erhöhung der Fließgeschwindigkeit ist nicht möglich, auch wenn der Eingangsdruck P_1 auf Werte größer $1.89 \cdot P_2$ angehoben wird. Allerdings hat jede Druckänderung einen Einfluss auf die Dichte (linearer Zusammenhang), wodurch wiederum der Massefluss

verändert wird. Temperaturänderungen haben den gleichen Effekt wie beim unterkritischen Fluss. Die Gasströmung im Bereich des kritischen Flusses kann mit folgender Gleichung beschrieben werden [47]:

$$\dot{m} = K \cdot \varepsilon_2 \cdot P \cdot S \cdot \frac{1}{\sqrt{T}} \quad (5)$$

Dabei ist K eine Gas-spezifische Konstante; ε_2 der Expansionskoeffizient; P der statische Druck des in die Düse eintretenden Gases; S die Querschnittsfläche der Düsenöffnung und T die Temperatur des durch die Düse fließenden Gases. K wird als konstant und gleich groß für Luft, Stickstoff und Abgas angenommen. S und ε_2 können für jeden Verdünner ebenfalls als konstant vorausgesetzt werden, womit alle drei Konstanten zu einem neuen, verdünnerspezifischen Faktor A_2 zusammengefasst werden können. Für die Berechnung des Probenahmestromes bei kritischem Fluss folgt dann:

$$Q_{sample} = \frac{A_2}{\sqrt{T_{sample}}} \cdot P_{sample} \quad (6)$$

Aufgrund von nicht idealem Verhalten der Düsenströmung und Unzulänglichkeiten bei der Druck- und Temperaturmessung ist es sinnvoll zur Steigerung der Genauigkeit eine additive Konstante B einzuführen. Zur Berechnung des Probenahmestromes ergibt sich dann folgende Transferfunktion:

$$Q_{sample} = \frac{A_2}{\sqrt{T_{sample}}} \cdot P_{sample} + B \quad (7)$$

In der Praxis bewegt sich der Einfluss von B im Bereich kleiner 3% von Q_{sample} . A_2 und B können während der Kalibrierung des Verdünners bestimmt werden. Der Probendruck und die Temperatur des Probengases sind während der Verdünnung zu messen.

2.1.2.2 Kalibrierung des Verdünners

Zur Kalibrierung der Verdünner wurde ein Versuchsaufbau verwendet, welcher die kontrollierte Einstellung und Überwachung aller relevanten Parameter wie Drücke, Temperaturen und Masseflüsse ermöglichte. Abbildung 2-9 zeigt eine schematische Darstellung dieser Messanordnung.

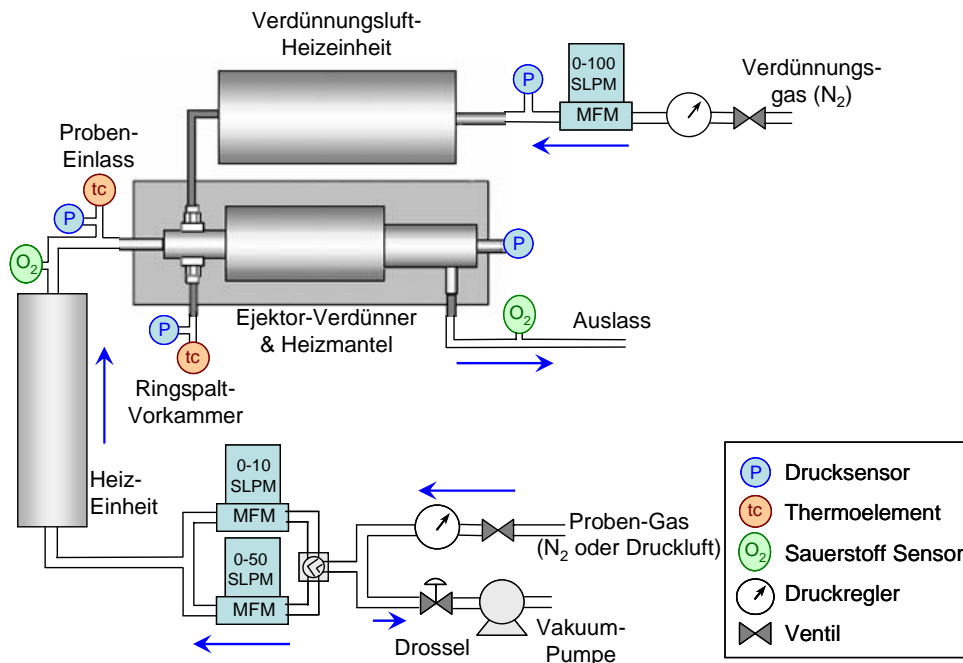


Abbildung 2-9: Laboraufbau zur Kalibrierung des Ejektor-Verdünners.

Die Kalibrierung erfolgte für Eingangsdrücke von 0.9 – 4 bar bei Probertemperaturen zwischen 20 und 240°C, was auch den zu erwartenden Bereich der in der Praxis auftretenden Abgaszustände repräsentiert. Der Verdünner wurde mit hinsichtlich Druck, Temperatur und Durchfluss kontrollierten Gasversorgungsleitungen verbunden, und während der meisten Tests durch einen als Zubehörteil erhältlichen Heizmantel (DH-1511) der Firma Dekati auf eine Temperatur von 240°C beheizt. Die Beheizung ist insbesondere bei der praktischen Abgasmessung notwendig, um neben der Verhinderung der Wasserkondensation auch die Minimierung von thermophoretischen Partikelverlusten innerhalb des Verdünners sicherzustellen. Aus den gemessenen Flussdaten konnte für alle eingestellten Bedingungen der jeweilige Verdünnungsfaktor entsprechend Gleichung (2) berechnet werden. Als Verdünnungsgas wurde komprimierter Stickstoff (Reinheitsgrad >99.999%), welcher meist auf ca. 210°C beheizt wurde, verwendet. Die Kontrolle der Flussrate erfolgte durch einen Massefluss-Regler mit einem Messbereich von 0 – 100 SLPM. Mittels Druckminderer wurde der nötige Eingangsdruck von 2.07 bar eingestellt, und durch einen Drucksensor überwacht. Der Probeneinlass des Verdünners war mit einem separaten Gasanschluss versehen, wobei

komprimierte Nullluft (Druck einstellbar zwischen 1 und 4 bar) als Probengas zum Einsatz kam. Um das Verhalten der Ejektor-Verdünner auch im Bereich von Eingangsdrücken kleiner als Umgebungsdruck zu untersuchen, wurde eine Bypasspumpe entsprechend Abbildung 2-9 eingebunden. Für eine möglichst genaue Probenfluss-Messung kamen zwei Flussmesser mit unterschiedlichen Messbereichen (0 – 10 SLPM und 0 – 50 SLPM) zum Einsatz. Dadurch konnte in Abhängigkeit vom tatsächlichen Probenfluss derjenige Flussmesser mit dem jeweils günstigeren Messbereich genutzt werden. Zur Simulation typischer Abgastemperaturen fand ein Durchfluss-Heizgerät in Verbindung mit einem Thermoelement am Probeneinlass zur Kontrolle (Regelung und Messung) der Probertemperatur Anwendung. Der Eingangsdruck wurde mittels eines Drucktransmitters überwacht.

Einige Messungen wurden bei Umgebungstemperatur (ca. 25°C, Verdünner und Verdünnungsgas ungeheizt) durchgeführt, um die dabei gemessenen Flussdaten mit den Hersteller-Spezifikationen abzugleichen. Das Ergebnis ist im Anhang in Abbildung A-3 gezeigt. Aufgrund der darin gezeigten Übereinstimmung kann die grundlegende Funktion des verwendeten Messaufbaues als sichergestellt angesehen werden.

Als Flussmessgeräte kamen thermische Masseflussmesser zum Einsatz, welche mittels eines elektronischen Blasen-Durchflussmessgerätes kalibriert wurden. Die Abstimmung der verwendeten Drucksensoren erfolgte durch Zweipunktkalibrierung.

Um eine zweite, von der Flussmessung unabhängige Methode zur Bestimmung des tatsächlichen Verdünnungsfaktors zu erhalten, wurden Breitband Lambda Sensoren (Bosch/ETAS LSU 4.9) zur Sauerstoff Tracergas-Messung in den Versuchsaufbau implementiert (s. Abbildung 2-9). Da reiner Stickstoff zur Verdünnung der Probenluft genutzt wurde, gibt das Verhältnis der Sauerstoffkonzentrationen am Eingang und Ausgang des Verdünners den Verdünnungsfaktor an:

$$DF = \frac{(\%O_2)_{inlet}}{(\%O_2)_{outlet}} \quad (8)$$

Weil die Lambda-Sensoren ein zum Sauerstoffpartialdruck proportionales Signal ausgeben, mussten die Rohsignale für Druckdifferenzen zwischen den Messstellen am Verdünnereinlass und Auslass korrigiert werden. Der Einfluss der Gastemperatur am Sensor ist jedoch vernachlässigbar, da die Sensorelemente auf 750°C geheizt wurden.

Als Ergebnis des Vergleichs der durch Flussmessung nach Gleichung (2) bestimmten Verdünnungsfaktoren mit den entsprechenden Werten aus den Tracergas-Messungen (Gleichung (8)) zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung mit einer mittleren relativen Abweichung von 0.75% (s. Abbildung A-4 im Anhang).

Bei der Kalibrierung wurde folgendermaßen vorgegangen: Der Verdünner wurde mit allen Gasleitungen, Heizgeräten und Sensoren wie in Abbildung 2-9 gezeigt verbunden. Als Temperaturen für die Heizung von Verdünner und Verdünnungsgas wurden entsprechend 240°C bzw. 210°C gewählt, wohingegen die Einlasstemperatur des Probenstroms variiert wurde. Während der Messungen wurde sowohl die Proben-Eingangstemperatur für verschiedene Probendrücke verändert als auch die Druckabhängigkeit von DF bei konstant gehaltenen Eingangstemperaturen untersucht. Der Druck- und Temperaturbereich der Probenluft wurde dabei an die zu erwartenden Bedingungen im Abgasstrang angelehnt, und betrug 900 – 4000 mbar bzw. 20 – 240 °C. Während aller Messungen wurde der Verdünnungsgas-Druck überwacht und auf 2.07 ± 0.035 bar gehalten. Der Druck an den Verdünnerauslässen betrug Umgebungsdruck ± 10 mbar. Vier Ejektor-Verdünner wurden entsprechend diesem Vorgehen kalibriert. Die für Drücke (P_{sample} , P_{outlet}), Eingangstemperaturen (T_{sample}) und Masseflüsse (Q_{sample}) erhaltenen Werte jedes Verdünners wurden benutzt um durch lineare Regression bzw. geeignete Optimierung die Parameter aus den Transferfunktionen (Gleichungen (4) und (7)) zu bestimmen. Die Parameter A_1 und ΔP_{min} für unterkritischen Fluss wurden durch Anpassen der Funktion (4) an die Daten im Proben-Druckbereich unter 1900 mbar ermittelt. Im Bereich höherer Drücke wurde Gleichung (7) zugrunde gelegt, woraus A_2 und B bestimmt werden konnten.

Im Folgenden sind beispielhaft die Ergebnisse der Kalibrierung von zwei verschiedenen Verdünnern dargestellt. Dabei sind die Messdaten als Punkte, und die Verläufe der jeweils berechneten Transferfunktionen als Linien eingezeichnet.

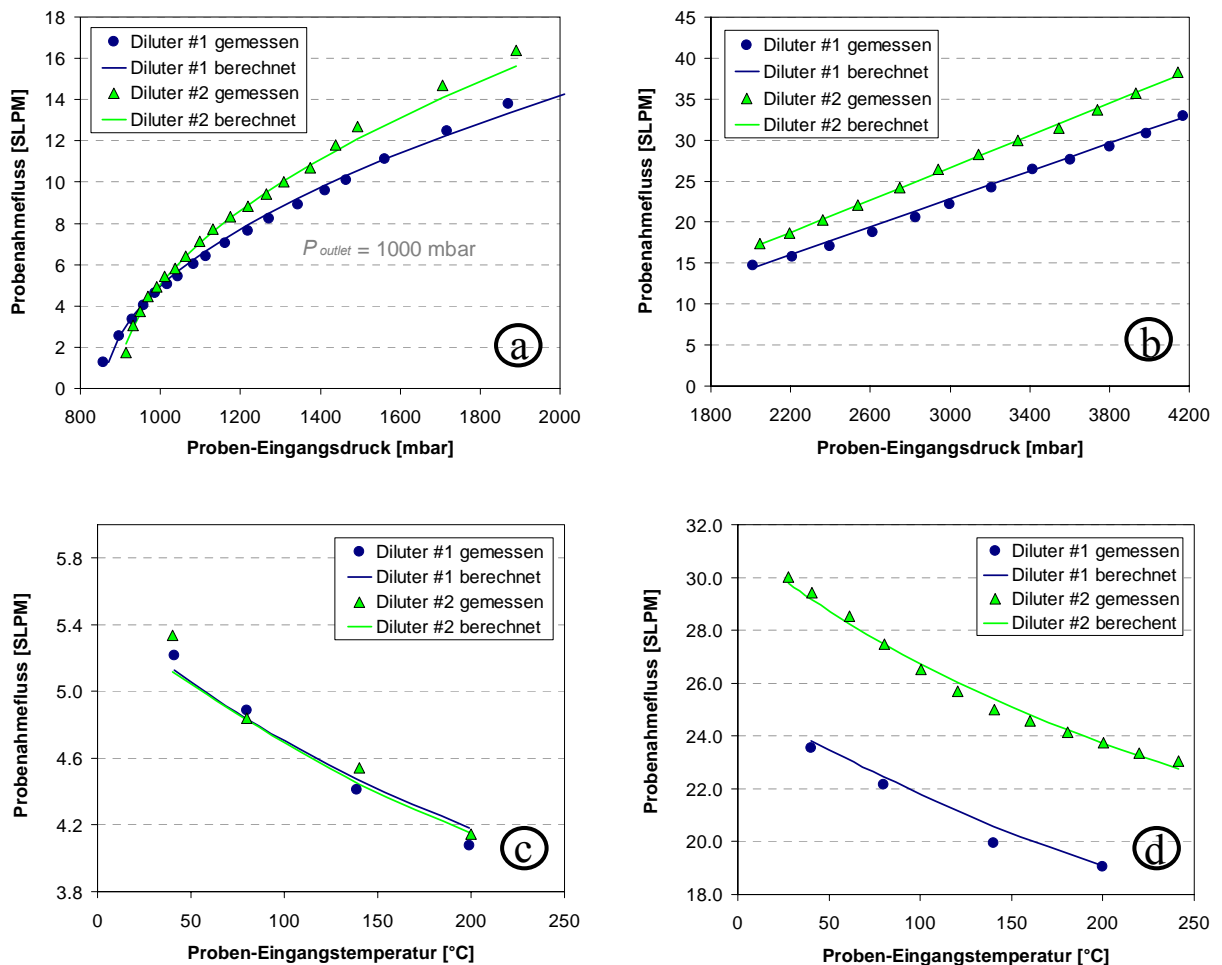


Abbildung 2-10: Berechneter und gemessener Probenahmefluss in Abhängigkeit von Eingangsdruck und -Temperatur für unterkritischen Fluss (a, c) und kritischen Fluss (b, d).

Die Druckabhängigkeit des Probenflusses ist in Abbildungen 2-10(a) und (b) zu sehen. Abbildung 2-10(a) veranschaulicht das nicht-lineare unterkritische Verhalten bei Proben-Drücken $P_{sample} < 1900 \text{ mbar}$ ($P_{outlet} = \text{Umgebungsdruck}$), wohingegen in Abbildung 2-10(b) der lineare Zusammenhang für den Bereich des kritischen Flusses ($P_{sample} > 1900 \text{ mbar}$) deutlich wird. Aus den Messungen bei verschiedenen Proben-Eingangstemperaturen (Abbildung 2-10(c), (d)) geht wie erwartet die Abnahme des Proben-Masseflusses mit steigender Proben-Temperatur hervor.

Mit Hilfe dieser im Labor bestimmten Transferfunktionen können dann während der realen Abgasverdünnung unter Messung von Temperatur und Druck am Verdünnereingang die entsprechenden Q_{sample} -Werte bestimmt werden. Mit diesen Daten und dem bekannten $Q_{dilution}$

ist somit die Ermittlung des tatsächlichen Verdünnungsfaktors nach Gleichung (2) zu jeder Zeit der Abgasmessung möglich.

Ein Überblick über ein typisches Verdünnerverhalten in Abhängigkeit von typischen Eingangsdrücken und –Temperaturen ist in Abbildung 2-11 gegeben.

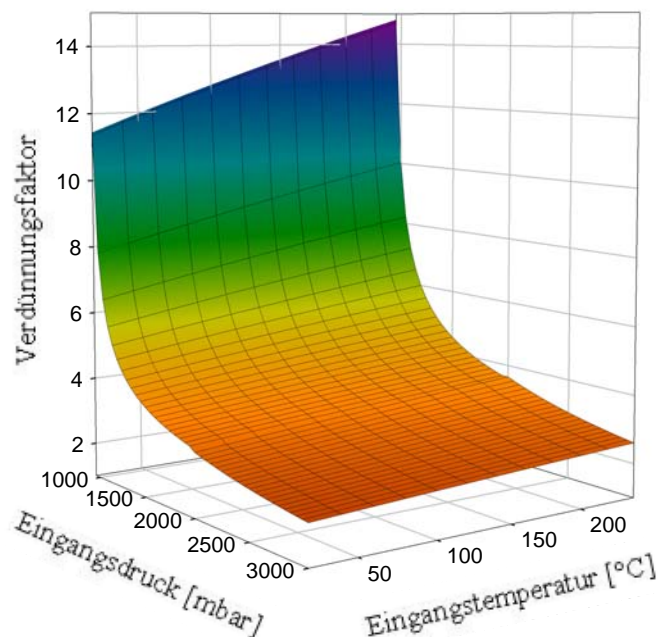


Abbildung 2-11: Berechnetes Verdünnungsfaktorkennfeld eines Ejektor-Verdünners in Abhängigkeit von Eingangsdruck und Eingangstemperatur für unterkritischen- und kritischen Fluss.

Die Darstellung ergibt sich aus den Ergebnissen der Transferfunktion im unterkritischen und kritischen Bereich. Dabei ist klar die im Vergleich zum Probedruck deutlich geringere Sensitivität von DF bezüglich der Probestemperatur zu erkennen. Weiterhin lässt sich daraus die Notwendigkeit einer möglichst genauen Druckmessung im Bereich kleiner Eingangsdrücke ableiten (da in diesem Bereich hohe Gradienten von DF bzgl. ΔP).

Tabelle 2-1 enthält eine Zusammenstellung der für alle vier kalibrierten Verdünnern ermittelten Kalibrierparameter.

Tabelle 2-1: Kalibrierparameter für unterschiedliche Verdüner zur Berechnung des druck- und temperaturabhängigen Verdünnungsfaktors.

Diluter s/n	Verdüner-Parameter				
	Unterkritischer Fluss		Kritischer Fluss		Verdünnungs- luft Fluss [SLPM]
	A_1	ΔP_{min}	A_2	B	
60109	9.59	-89	0.204	-4.96	36
L630	8.83	-104	0.168	-2.38	36
L511	8.21	-119	0.160	-2.69	43
L512	9.32	-141	0.185	-2.86	41

Es kann davon ausgegangen werden, dass diese Werte hauptsächlich durch den Aufbau des jeweiligen Verdüners, insbesondere durch die geometrischen Verhältnisse an der Düse bestimmt werden. Da alle 4 untersuchten Verdüner zum selben Typ gehörten, spiegeln die Unterschiede in den aufgelisteten Parametern wahrscheinlich entsprechende Fertigungstoleranzen wider.

2.1.2.3 Analyse der theoretisch zu erwartenden Genauigkeit / Fehlerabschätzung

Die gewünschte Ausgangsgröße des entwickelten Modells ist der Verdünnungsfaktor. Dessen Genauigkeit wird sowohl von systematischen Fehlern (Unzulänglichkeiten im Modell bzw. Verfahren) als auch durch Messunsicherheiten in den Eingangsgrößen (Druck, Temperatur, Verdünnungsgas-Fluss) beeinflusst. Im Folgenden soll die Auswirkung dieser Fehlerquellen auf das Vertrauensintervall des vom Modell gelieferten Verdünnungsfaktors DF untersucht werden.

DF wird durch Einsetzen des aus Gleichung (4) bzw. (7) berechneten Probenflusses in Gleichung (2) bestimmt. Die Genauigkeit von DF ist somit von den 3 gemessenen Größen Probendruck, Probentemperatur und Verdünnungsgasfluss abhängig. Darüber hinaus beeinflussen auch die 4 Kalibrierparameter der beiden Transferfunktionen (A_1 , ΔP_{min} , A_2 und

B) die Genauigkeit von DF . Die Unsicherheiten der Druck- bzw. Temperaturmessungen können basierend auf den Hersteller-Spezifikationen und Erfahrungswerten aus den Messungen abgeschätzt werden. Als Ergebnis werden für die Druckmessungen Fehler von ± 4 % und für die Temperaturmessung Unsicherheiten von ± 2 % angesetzt. Alle Gasflüsse wurden mittels thermischer Masseflussmesser bestimmt, für welche die spezifizierte Genauigkeit von ± 2 % angesetzt wird.

Die Unsicherheiten in den Parametern der Transferfunktionen wurden für das 2σ Konfidenzintervall aus den Regressionsdaten abgeleitet. Bei typischen Kalibrierdaten, wie in Abbildung 2-12 gezeigt, ergibt sich im Bereich des unterkritischen Flusses (Transferfunktion (4)) die Unsicherheit in A_1 zu ± 2 % und in ΔP_{min} zu ± 7 %. Für den kritischen Fluss folgt für $A_2 \pm 3$ % und für $B \pm 20$ %.

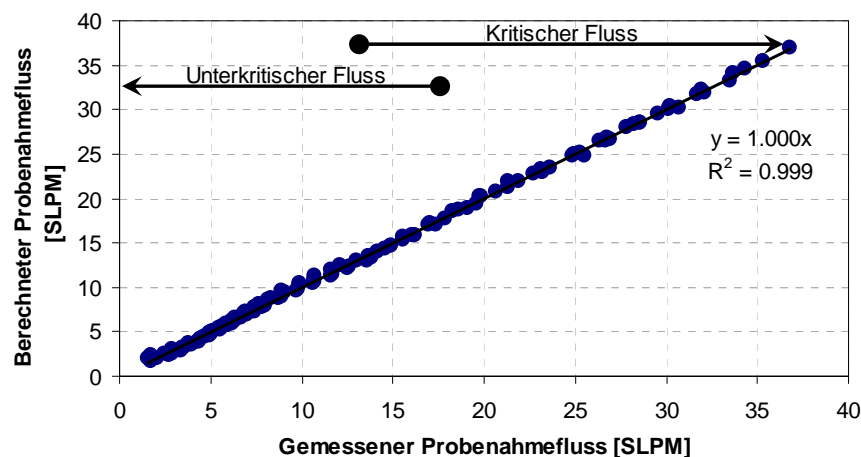


Abbildung 2-12: Korrelation zwischen berechnetem und gemessenem Probenahmefluss für 4 untersuchte Ejektor-Verdünner bei verschiedenen Eingangsdrücken und -temperaturen im stationären Betrieb.

Der Gesamtfehler in DF wird durch Fehlerfortpflanzung der einzelnen Fehler durch die Gleichungen (2), (4) und (7) für beide Flussregime bestimmt. Dabei trägt die Temperaturmessung am wenigsten zum Gesamtfehler bei. Die Unsicherheit von ± 2 % in T_{sample} verursacht in beiden Flussregimen weniger als ± 0.4 % Fehler in DF . Die Unsicherheiten in den Druckmessungen tragen im Bereich des unterkritischen Flusses mit $\pm(2-3)$ % und für kritischen Fluss mit $\pm(3-4)$ % zum Fehler in DF bei. Dabei ist anzumerken, dass aufgrund des nichtlinearen Verhaltens der Einfluss der Druckmessfehler auf die

Unsicherheit in DF besonders im Bereich kleiner Probendrücke ($P_{sample} < P_{outlet}$) mit abnehmenden Drücken stark zunimmt. Für $(P_{sample} - P_{outlet}) < \frac{1}{2} \times \Delta P_{min}$ können Fehler in DF von >20 % auftreten, weshalb im Hinblick auf die Messgenauigkeit empfohlen wird, diesen Bereich (typischerweise $(P_{sample} - P_{outlet}) < -40$ mbar) zu meiden. Einen weiteren Einfluss stellt $Q_{dilution}$ dar. Unter normalen Bedingungen können ± 2 % Unsicherheit in $Q_{dilution}$ angenommen werden, was für $P_{sample} \approx P_{outlet}$ (unterkritischer Fluss) zu ± 4 % Unsicherheit in DF führt. Mit steigendem Probendruck nimmt der Einfluss der Unsicherheit in $Q_{dilution}$ auf die Genauigkeit von DF auf unter 1 % (kritischer Fluss) ab.

Die Sensitivität von DF bezüglich der Parameter aus den Transferfunktionen wurde ebenfalls untersucht. Für den Bereich des unterkritischen Flusses ergeben sich aus ± 2 % Fehler in A_1 $\pm(3-4)$ % Unsicherheit in DF , während ± 7 % in ΔP_{min} sich mit $\pm(2 - 4)$ % in DF auswirken. Für die Transferfunktion bei kritischem Fluss ergeben sich aus den Unsicherheiten von ± 3 % in A_2 und ± 20 % in B Fehler von jeweils $\pm(2-4)$ % in DF .

Die Beiträge der einzelnen Messgrößen (P_{sample} , T_{sample} und $Q_{dilution}$) sowie diejenigen der Kalibrier-Parameter (A_1 , ΔP_{min} , A_2 und B) werden als statistisch unabhängig angenommen. Somit kann die Gesamtunsicherheit von DF unter stationären Bedingungen auf $\pm(4-8)$ % (95 % Vertrauensintervall) abgeschätzt werden, wobei der zu erwartende relative Fehler mit steigendem Probendruck abnimmt.

2.1.2.4 Validierung der entwickelten Methode unter realen Testbedingungen

Die Validierung des entwickelten Verfahrens unter realen Testbedingungen wurde während Abgasmessungen am Rollenprüfstand durchgeführt. Als Vergleichsmethode zur Bestimmung des tatsächlichen Verdünnungsfaktors kam die bereits beschriebene Tracergas-Messung zum Einsatz. Um eine einfache Handhabung des Verdünneraufbaus zu ermöglichen, waren alle Komponenten (Verdünner mit Heizmantel, Verdünnungsgas-Heizung, Drucksensoren, Temperatursensor, Netzteil, A/D-Wandler und Laptop), inklusive der für die Tracergas-Messung benötigten Elemente wie in Abbildung 2-13 gezeigt auf einem Messwagen aufgebaut.

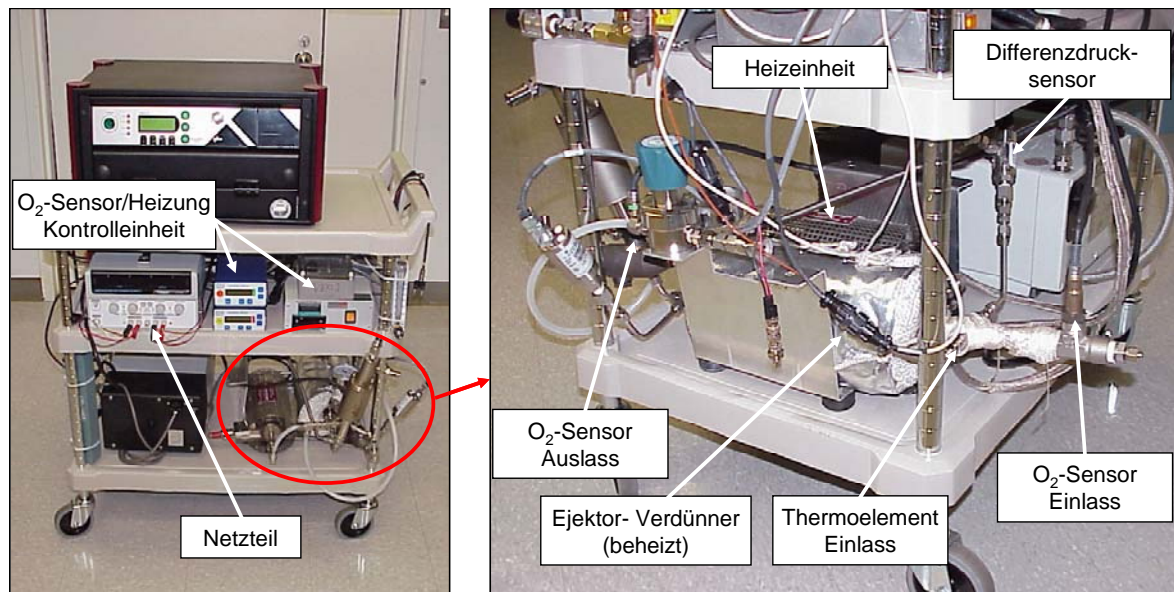


Abbildung 2-13: Aufbau des Verdünnersystems inkl. Tracergas-Messung für Validierungsmessungen am Rollenprüfstand.

Vor jedem Test wurde eine Aufwärm- bzw. Stabilisierungsphase von mind. 1 Stunde für alle relevanten Komponenten sichergestellt sowie eine Zweipunktkalibrierung der Tracergassensorik durchgeführt. Als Testfahrzeug wurde ein DPF ausgerüsteter Diesel-Pkw genutzt. Der Verdünnereinlass wurde mittels einer beheizten Edelstahlleitung an eine Abgasmessstelle zwischen DPF und Katalysator angeschlossen, wobei abhängig vom Motorbetriebszustand (Last, Drehzahl) ein variierender Probedruck P_{sample} auftrat. Die Verdünnung des Rohabgases erfolgte durch Stickstoff. Insgesamt 11 NEDC Fahrzyklen (transient) und 2 gestufte Konstantfahrt-Tests (jeweils Leerlauf, 30, 50, 70, 100, 120, 150 und 170 km/h einschließlich der Geschwindigkeitswechsel) wurden durchgeführt. Dabei schwankte der Probedruck im Bereich $-50 \text{ mbar} < (P_{sample} - P_{outlet}) < 250 \text{ mbar}$, in welchem DF die größte Empfindlichkeit gegenüber dem Probedruck aufweist. Die Berechnung des Verdünnungsfaktors DF erfolgte aus den mit Sekundenauflösung aufgezeichneten Druck- und Temperatursignalen. Um das Signalrauschen sowohl in den Druck- als auch in den Sauerstoffsignalen zu reduzieren, wurde ein frequenzabhängiger Filter (basierend auf dem Butterworth-Tiefpass Filter) angewendet. Abbildung 2-14 zeigt die Ergebnisse eines repräsentativen Tests.

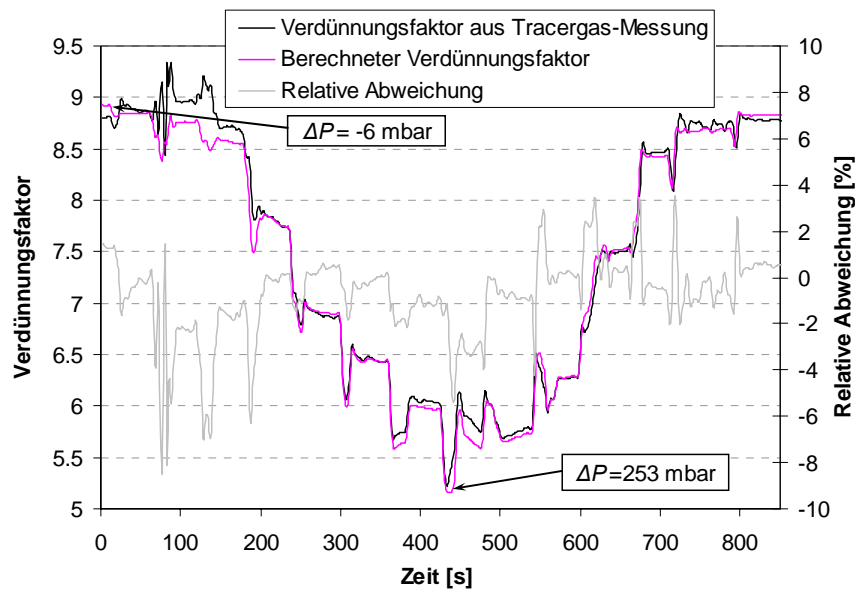


Abbildung 2-14: Vergleich von gemessenem (Tracer-Methode) und berechnetem Verdünnungsfaktor für eine Abgasmessung am Rollenprüfstandprüfstand während eines dynamischen Fahrzyklusses.

Verglichen sind die über die Transferfunktion berechneten Verdünnungsfaktoren mit den entsprechenden aus Tracergas-Messungen ermittelten Werten. Die daraus resultierenden relativen Abweichungen sind ebenfalls aufgetragen. Insgesamt zeigt sich eine gute Übereinstimmung von gemessenem und berechnetem DF . Ausgehend von der Tracergas-Messung beträgt der Unterschied zwischen beiden Werten meistens unter 5 %, womit die aus der Fehlerabschätzung ermittelten 4 % – 8 % Fehler bestätigt werden. Die größten Fehler treten während schneller Druckänderungen (d.h. Geschwindigkeitswechsel) auf, was zum Teil auf die Verwendung eines stationären Modells zur Berechnung von DF zurückzuführen ist. Eine weitere Fehlerquelle während dieser transienten Ereignisse könnte das unterschiedliche Antwortverhalten der einzelnen Sensoren und die damit verbundenen Abweichungen in der Signalsynchronisierung sein. In Abbildung 2-15 ist die Fehler-Häufigkeitsverteilung aller 13 Tests (ca. 15000 Datenpunkte) zusammenfassend dargestellt. Als Referenz wurden die jeweiligen Daten aus der Tracergas-Messung zugrunde gelegt.

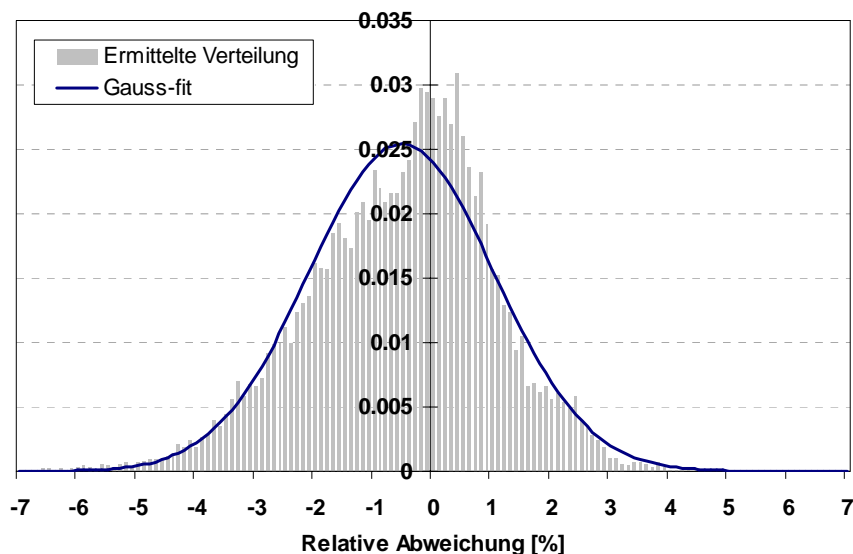


Abbildung 2-15: Häufigkeitsverteilung der während verschiedener Rollentests ermittelten relativen Abweichungen zwischen berechneten und aus Tracergas-Messungen bestimmten Verdünnungsfaktoren.

Daraus wird deutlich, dass das beobachtete Verhalten gut durch die Gauß-Verteilung repräsentiert wird. Die leichte Verschiebung hin zur Unterschätzung der tatsächlichen DF s um ca. 0,5 % könnte ebenso auf Unvollkommenheiten in der Tracergas-Messung zurückzuführen sein. Somit kann davon ausgegangen werden, dass das entwickelte Verfahren keine signifikanten systematischen Fehlerquellen beinhaltet, und die Ungenauigkeit (95 % Vertrauensintervall), wie bereits abgeschätzt, im Bereich $\pm(4-8)$ % liegt.

Damit steht ein relativ einfaches sowie robustes Teilstrom-Verdünnungsverfahren mit vergleichsweise hoher Genauigkeit bei der Bestimmung des tatsächlichen Verdünnungsfaktors zur Verfügung. Es ermöglicht die flexible und definierte Abgasentnahme an beliebigen Stellen des Abgassystems. Durch die Abdeckung eines weiten Abgasdruck- und Temperaturbereiches bietet es im Vergleich zu herkömmlichen Verdünnungsverfahren erweiterte messtechnische Möglichkeiten bei der Entwicklung komplexer Abgasnachbehandlungssysteme.

2.1.2.5 Vergleich mit kommerziell erhältlichen Verdünnungssystemen

Wie bereits unter 2.1.2 erwähnt, gibt es im Wesentlichen zwei kommerziell verfügbare Verdüner (AVL Konditioniereinheit und FPS), welche ein ähnliches Einsatzspektrum wie

die entwickelte Ejektor-Methode aufweisen. Dabei bietet jedes System spezifische Vor- und Nachteile, wodurch die Auswahl des einzusetzenden Verdünners vom jeweiligen Anwendungsfall abhängig ist. Im Folgenden soll ein Vergleich der 3 Verdünnersysteme im Hinblick auf deren Genauigkeit bezüglich des Verdünnungsfaktors vorgenommen werden. Dazu wurden die Verdüner während transienter Fahrzeugtests am Rollenprüfstand untersucht. Während aller Messungen erfolgte die Probenahme vor einem DPF, um speziell das Verhalten der Verdüner bei Druck- und Temperaturschwankungen zu evaluieren. Zur Überprüfung der von den Verdünnern angegebenen Verdünnungsfaktoren wurden jeweils im verdünnten Abgas die PM-Massen (Integralwerte über gesamten Fahrzyklus) gemessen, welche mittels der vom entsprechenden Verdüner angegebenen Verdünnungsfaktoren auf das Rohabgas umgerechnet und anschließend miteinander verglichen wurden. Somit wurde die PM-Messung als Tracermethode zum Abgleich der Verdünnungsfaktoren genutzt. Aus praktischen Gründen (Verfügbarkeit von Messgeräten, begrenzte Anzahl der Probenahmestellen, hoher Installationsaufwand beim FPS) wurden jeweils nur zwei Verdüner gleichzeitig betrieben, wobei entweder der Ejektor-Verdüner oder die AVL-Konditioniereinheit parallel zum FPS zum Einsatz kamen. Mangels Verfügbarkeit zweier identischer PM-Messgeräte mussten ein TSI EEPS und ein AVL Micro Soot Sensor (AVL483) zur Bestimmung der im verdünnten Abgasaerosol enthaltenen PM-Massen herangezogen werden. Da die Korrelation zwischen den Messwerten dieser Geräte vom Aerosol selbst beeinflusst werden kann (siehe Messgeräteevaluierung in Abschnitt 2.1.1), wurden alle Messungen am selben Fahrzeug (Diesel-Pkw mit DPF) durchgeführt. Hintergrund dabei war die Bereitstellung eines möglichst gleichförmigen Rußaerosols zur Optimierung der Übereinstimmung zwischen EEPS und AVL483. Für die Umrechnung der vom EEPS gelieferten Spektraldaten in PM-Massen wurde die in Kapitel 2.1.1 gefundene Dichtefunktion $\rho_{eff}(D_p) = 1 \text{ g/cm}^3$ benutzt. Die Ermittlung des Zusammenhanges zwischen den Messergebnissen von EEPS und AVL483 erfolgte mittels paralleler Messungen entweder am FPS oder am Ejektor-Verdünnungssystem. Das Ergebnis dieser Korrelationsanalyse ist in Abbildung 2-16 dargestellt.

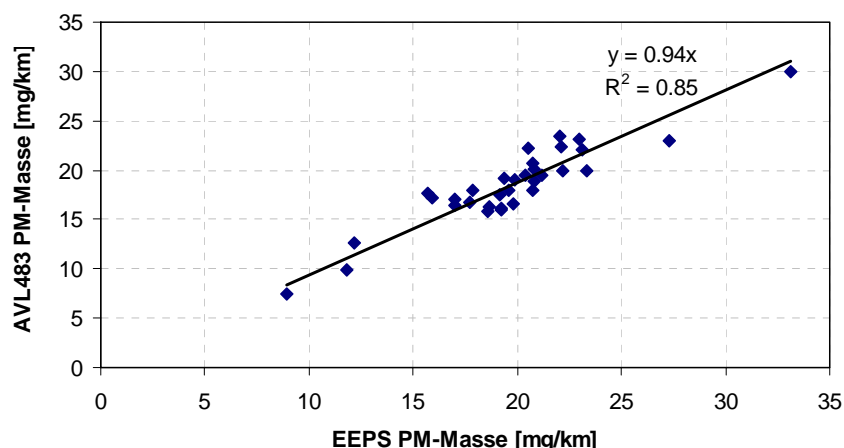


Abbildung 2-16: Korrelation zwischen mittels AVL483 gemessener PM-Masse und den aus entsprechenden EEPS Daten berechneten PM-Masse Werten.

Es zeigt sich, dass unter den getesteten Bedingungen eine ausgeprägte Korrelation zwischen EEPS und AVL483 besteht. Tendenziell werden vom AVL483 um ca. 6% geringere PM-Massewerte gemessen als die aus den entsprechenden EEPS-Daten abgeleiteten Werte. Um diese systematische Abweichung zu berücksichtigen, wurden alle während des Verdünnervergleichs vom AVL483 gemessenen PM-Massewerte mit dem Faktor 1.06 multipliziert.

Zur Gegenüberstellung der Verdünnungssysteme wurden EEPS und AVL483 jeweils getrennt an den zu vergleichenden Verdünnern betrieben. Die dabei erhaltenen PM-Massewerte wurden dann mittels der von den Verdünnern angegebenen Verdünnungsfaktoren auf das Rohabgas umgerechnet. Nach Korrektur der AVL483-Messwerte mit dem Faktor 1.06 erfolgte dann die Gegenüberstellung der über die einzelnen Verdüner bestimmten und auf das Rohabgas bezogenen PM-Massewerte. Alle Unterschiede in diesen Daten sollten dann, abgesehen von zufälligen Streuungen in der Korrelation zwischen EEPS und AVL483, hauptsächlich auf die untersuchten Verdüner zurückzuführen sein. Abbildung 2-17 zeigt die Ergebnisse des Vergleichs der drei verschiedenen Verdünersysteme.

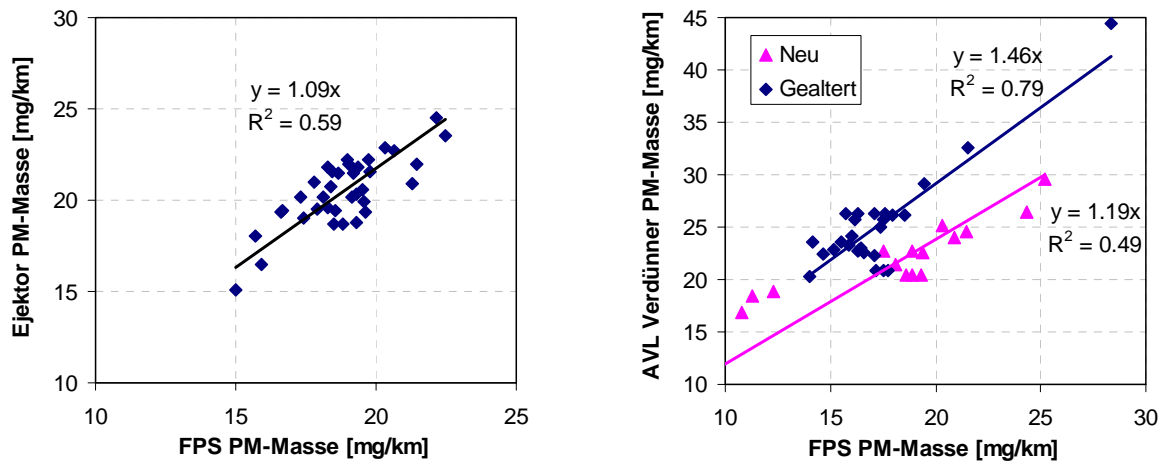


Abbildung 2-17: Vergleich der mittels Ejektor- und AVL-Verdünner ermittelten pre-DPF PM-Masse Daten mit den entsprechenden FPS-Verdünner Werten.

Um eventuelle zusätzliche systematische Messgeräteeinflüsse weiter zu minimieren, wurden die Messgeräte/Verdünnerkombinationen von Test zu Test getauscht. Das heißt, im Fall des FPS / Ejektor Vergleiches, erfolgten die Messungen wechselweise mit der Kombination FPS + EEPS und Ejektor + AVL483 bzw. FPS + AVL483 und Ejektor + EEPS. Beim Vergleich zwischen FPS und AVL Konditioniereinheit war dieser Wechsel nicht möglich, da die Konditioniereinheit, wie schon erwähnt, ausschließlich in Verbindung mit dem AVL483 betreibbar war.

Aus dem in Abbildung 2-17 links dargestellten Diagramm geht hervor, dass die entwickelte Ejektor-Verdünnungsmethode vergleichbare Ergebnisse wie das kommerziell erhältliche FPS liefert. Die teilweise relativ großen Abweichungen von der Ausgleichsgeraden werden zum Teil durch die in Abbildung 2-16 sichtbare Streuung in der Instrumentenkorrelation verursacht. Der Vergleich zwischen AVL Konditioniereinheit und dem FPS zeigt signifikante Abweichungen zwischen den beiden Verdünnersystemen. Außerdem konnte eine Veränderung der Korrelation zwischen den Geräten über der Einsatzzeit beobachtet werden, wobei die Abweichung zwischen AVL483-Werten und den FPS-Ergebnissen mit der Zeit zunahm. Da das FPS und das Ejektor-System konsistente Ergebnisse lieferten, und beim entwickelten Ejektor-Verfahren von Fehlern kleiner als 8 % ausgegangen werden kann (vgl. Abschnitt 2.1.2.4) sind die festgestellten Unterschiede wahrscheinlich auf Probleme bei der AVL-Konditioniereinheit zurückzuführen. Zur genauen Identifizierung der Fehlerursache sind

weiterführende Analysen notwendig, welche nicht im Rahmen dieser Arbeit vorgenommen werden können. Es wird jedoch deutlich, dass die Verdünnung besonders bei Anwendungen mit variierenden Abgasdrücken bzw. -temperaturen eine signifikante Einflussgröße darstellt, und deshalb besonderer Aufmerksamkeit bedarf.

2.1.3 Anwendung der entwickelten Methode zur DPF-Charakterisierung

Eine der wichtigsten und zugleich anspruchsvollsten Anwendungen für das entwickelte Ejektor-Verdünnungsverfahren stellt die PM-Quantifizierung zwischen Motor und DPF dar. Dabei ist insbesondere die Bewertung der unbehandelten Motorabgas-Rohemissionen, die Erfassung der Belastung des DPF durch einströmende Partikel und die Bestimmung der Effizienz des DPF von Interesse. Im Folgenden soll beispielhaft auf die Messung der DPF-Filtereffizienz eingegangen werden. Der dazu verwendete Versuchsaufbau ist schematisch in Abbildung 2-18 dargestellt.

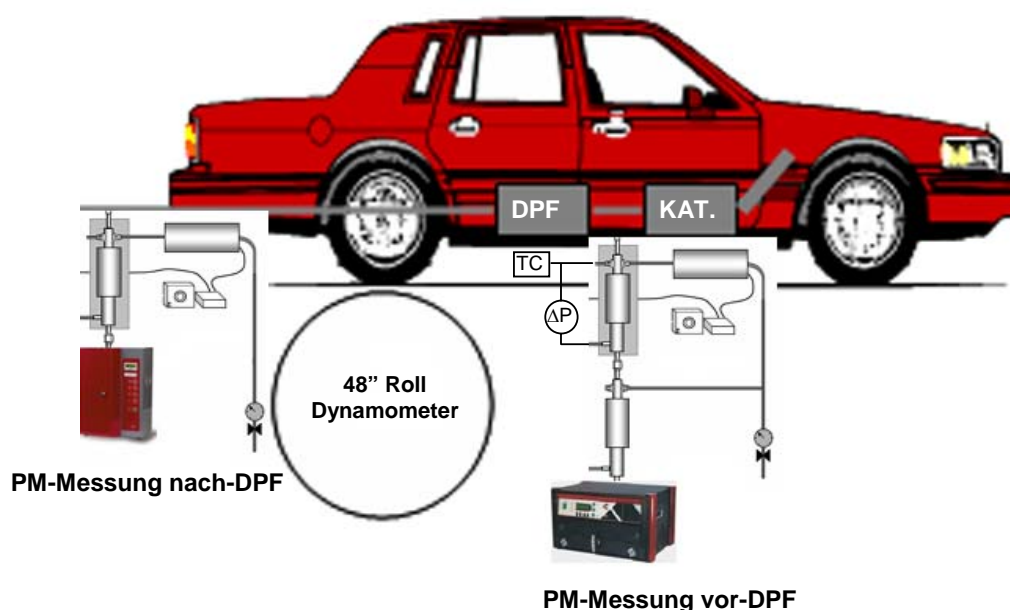


Abbildung 2-18: Versuchsaufbau zur Bestimmung der zeit- und größen aufgelösten DPF-Filtereffizienz am Rollenprüfstand während transienter Fahrzyklen.

Grundlegend beruht die Bestimmung der DPF-Effizienz auf der Messung der PM-Konzentration sowohl vor- als auch nach dem DPF. Aus dem Verhältnis dieser Werte wird dann die Filtrationseffizienz wie folgt berechnet:

$$\text{Effizienz} = \left(1 - \frac{PM_{out}}{PM_{in}}\right) \cdot 100\% \quad (9)$$

Dabei kann die Effizienz sowohl bezüglich PM-Masse als auch für die Anzahl bestimmt werden, indem entsprechend PM-Massekonzentrationen bzw. PM-Anzahlkonzentrationen in Gleichung (9) eingesetzt werden.

Zur Messung der PM-Konzentrationen vor dem DPF wurde der bereits unter 2.1.2.4 beschriebene Verdünneraufbau (Messwagen) verwendet. Um ein höheres Verdünnungsverhältnis zu erreichen, wurde zusätzlich ein zweiter Ejektor-Verdünner nachgeschaltet. Das kritische Element dieser Probenahme stellte die Primärverdünnung dar, da diese die im Abgasstrang auftretenden Druck- und Temperaturschwankungen abzufangen hatte. Deshalb erfolgte die Primärverdünnung nach dem in Abschnitt 2.1.2 beschriebenen Probenahmeverfahren. Am Probeneinlass der zweiten Verdünnungsstufe herrschten dann konstante Druck- und Temperaturverhältnisse, wodurch die Verwendung eines konstanten Standard-Verdünnungsfaktors ohne Druck- und Temperaturkorrektur möglich war. Bei der Probenahme nach dem DPF, also am Auspuff, sind Druck- und Temperaturschwankungen ebenfalls vernachlässigbar. Um jedoch sowohl die Kondensation von Wasser zu vermeiden als auch die thermophoretischen Verluste bei der Verdünnung des heißen Abgases zu minimieren, erfolgte eine Beheizung von Verdünner und Verdünnungsluft auf ca. 200°C. Aufgrund der sehr geringen PM-Konzentrationen nach dem DPF war eine weitere Verdünnung nicht nötig. Bei einigen Messungen wurde anstelle des Ejektor-Verdünners ein Dekati FPS zur Verdünnung am Auspuff eingesetzt. Für die PM-Messung kamen abwechselnd die unter 2.1.1 untersuchten Echtzeit Instrumente (AVL483, EEPS, DMM) zum Einsatz. Zur Korrektur der dabei erhaltenen Messwerte bzw. zur Berechnung der PM-Masse aus den EEPS-Größenspektren wurden die während der Messgeräteevaluierung entsprechend gefundenen Korrelationen bzw. die angepasste Dichtefunktion genutzt.

Als Testfahrzeug kam ein handelsüblicher Pkw (Baujahr 2006, Euro-4) zum Einsatz. Dieses Fahrzeug besaß einen turboaufgeladenen 2 Liter Common-Rail Dieselmotor. Ausgerüstet mit

einem Oxidationskatalysator in Verbindung mit einem katalysierten, geschlossenen SiC-DPF System (c-DPF) repräsentierte es den aktuellen technischen Stand.

2.1.3.1 Bestimmung der DPF Effizienz bezüglich PM-Anzahl

Die Bestimmung der DPF-Filtereffizienz wurde für den standardmäßig angewendeten transienten NEDC-Fahrzyklus vorgenommen. Abbildung 2-19 zeigt beispielhaft die während eines typischen NEDCs gemessenen Verläufe der PM-Anzahlen, (zeitbezogene Emissionsfaktoren) sowohl vor- als auch nach dem DPF.

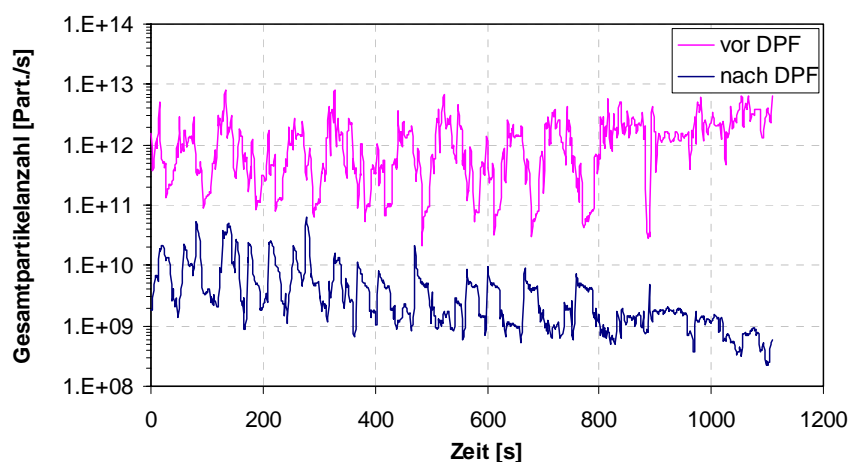


Abbildung 2-19: *Vergleich der Zeitverläufe von PM-Anzahl vor- und nach DPF für einen SiC-Diesel Partikel Filter während eines typischen NEDC-Rollentests.*

Dabei ist deutlich die große Differenz zwischen den PM-Anzahlen vor- und nach DPF zu erkennen, welche sich über 2 – 3 Größenordnungen erstreckt. In Abbildung 2-20 sind die über 29 NEDC-Zyklen gemittelten Partikel-Größenverteilungen für die Messstellen vor- und nach DPF zusammenfassend dargestellt.

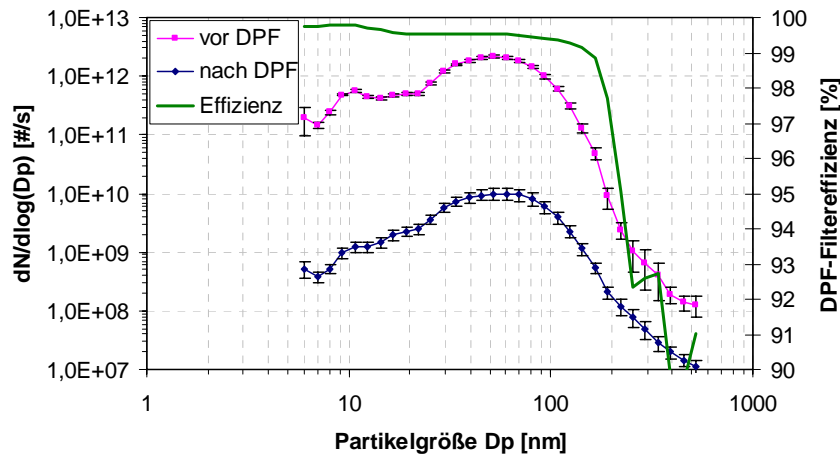


Abbildung 2-20: Mittlere Partikel-Größenverteilungen von 29 NEDC-Rollentests gemessen vor und nach DPF, sowie die daraus abgeleitete DPF-Filtereffizienz. Eingezeichnete Fehlerbalken zeigen das 95 % Vertrauensintervall (*t*-Statistik).

Zusätzlich ist die daraus nach Gleichung (9) berechnete größenabhängige Filtereffizienz des untersuchten DPF eingezeichnet. Dabei wird deutlich, dass über den gesamten relevanten Partikel-Größenbereich, einschließlich den der ultrafeinen Partikel, eine sehr effektive Verringerung der PM-Anzahlemissionen um $> 99\%$ durch den DPF erfolgt. Die Gründe für die gleichzeitig sehr gute Abscheidung von sowohl feinen Partikeln als auch der ultrafeinen Partikelfraktion ergeben sich aus den zugrundeliegenden Mechanismen. So erfolgt die Filterung der ultrafeinen Partikel hauptsächlich durch Diffusionsabscheidung, wohingegen die feinen Partikel vorrangig durch Trägheitsimpaktion abgefangen werden. Diese beiden Abscheidemechanismen sind jeweils besonders für sehr kleine ($D_p < 100\text{ nm}$) bzw. sehr große Partikel ($D_p > 1000\text{ nm}$) wirksam. Im dazwischen liegenden Größenbereich ist die Effektivität von Impaktions- und Diffusionsabscheidung geringer, was auch eine wahrscheinliche Ursache für die in Abbildung 2-20 sichtbare Verminderung der DPF-Filtereffizienz bei Partikelgrößen um $D_p \approx 500\text{ nm}$ darstellt.

2.1.3.2 DPF Effizienz für PM-Masse

Die DPF-Filtereffizienz bezüglich der PM-Masse wurde analog zur anzahlbezogenen Effizienz bestimmt. Um statistisch möglichst abgesicherte Aussagen zu erhalten, wurden insgesamt 20 NEDC-Tests durchgeführt und ausgewertet. Ein typischer, über einen

kompletten Fahrzyklus gemessener Zeitverlauf der Filtereffizienz ist in Abbildung 2-21 dargestellt.

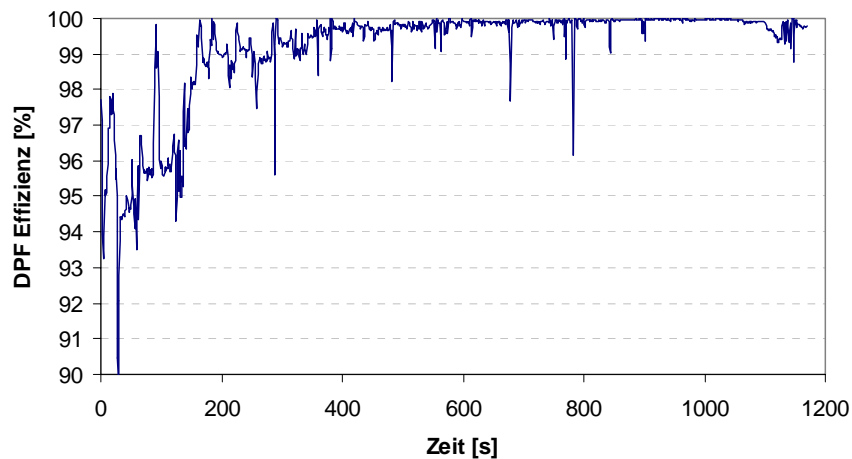


Abbildung 2-21: Zeitaufgelöste massebezogene Filtereffizienz eines SiC-Diesel Partikel Filters während eines typischen NEDC-Rollentests.

Daraus ergibt sich eine durchschnittliche Filtrationseffizienz von ca. 99 %. Weiterhin ist eine Zunahme der Effizienz mit fortschreitender Zeit zu erkennen. Dieses Verhalten wurde während aller durchgeführten Tests beobachtet, und ist wahrscheinlich auf thermische Effekte, verursacht durch eine stetige Zunahme der Abgastemperatur über der Testzeit, zurückzuführen. Die über alle 20 NEDCs gemittelte DPF-Filtereffizienz bezüglich PM-Masse betrug 99.3 % mit einer Standardabweichung von 0.38 %.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass moderne geschlossene DPF-Systeme in der Lage sind, Partikel mit sehr hoher Effektivität aus dem Abgas zu entfernen. Dabei werden hohe Abscheideraten von durchschnittlich > 99 % über den gesamten Größenbereich einschließlich den der ultrafeinen Partikel erreicht. Dieses Ergebnis wird u.a. durch entsprechende Beobachtungen in Liu et al. [40] und Vogt et al. [48] bestätigt.

2.2 Atmosphärische Messungen in der Abgasfahne

Vor dem Hintergrund einer weltweit zunehmenden Verschärfung der PM Emissionsgrenzwerte (z.B. EU-5 [34]), und der damit einhergehenden steigenden Kundennachfrage nach niedrig emittierenden Fahrzeugen, scheint die flächendeckende Einführung von DPF-Systemen, zumindest bei Diesel-Fahrzeugen, unumgänglich. Wie im vorangegangenen Abschnitt und in weiteren Prüfstandsuntersuchungen (z.B. [49] und [50]) gezeigt, können mittels dieser Technologie deutliche Verminderungen der Partikelemissionen erzielt werden.

Allerdings können, wie ebenfalls aus früheren Studien bekannt, im Emissionslabor gemessene Partikel-Größenverteilungen deutlich durch die jeweils angewendeten Probenahmebedingungen beeinflusst werden. Speziell die Bildung von Nukleationspartikeln ist entscheidend von der Art der Verdünnung abhängig ([44], [51], [52]). Um Unterschiede zwischen realer Abgasverdünnung in der Atmosphäre und der Laborverdünnung zu untersuchen, führten Kittelson et al. [53] Straßenfahrt-Messungen der PM-Emissionen von Diesel-Lkw durch, und verglichen die erhaltenen Ergebnisse mit entsprechenden Laborresultaten. Weiterhin wurden während verschiedener Chasing-Experimente PM-Anzahlemissionsfaktoren und PM-Größenverteilungen für EU-3 Dieselfahrzeuge ([51], [54], [55]) unter atmosphärischen Verdünnungsverhältnissen gemessen. Für moderne DPF ausgerüstete Diesel-Pkw existieren jedoch derzeit keine veröffentlichten real-world Daten. Da allerdings die durch DPF-Systeme bewirkte extreme Reduzierung der zur Kondensation verfügbaren Partikeloberfläche (durch starke Verminderung der PM-Anzahl) die Entstehung von Nukleationspartikeln fördert ([56], [57]), sind gerade für diese Fahrzeugkategorie real-world Daten zu PM-Größenverteilungen wünschenswert.

Im Folgenden sollen daher die PM-Emissionen eines modernen DPF ausgerüsteten Diesel-Pkw unter realen Bedingungen in der Atmosphäre untersucht werden. Dazu wurden PM-Messungen während Vollast-Beschleunigungen, im Motor-Schubbetrieb, während Konstantfahrten und bei DPF-Regenerationen durchgeführt. Das Ziel dabei war die Bestimmung größen aufgelöster real-world PM-Emissionsfaktoren, welche dann mit Daten von entsprechenden Rollenprüfstands-Versuchen verglichen wurden.

2.2.1 Motivation – realer Aerosolverdünnungsprozess

Abgase stellen komplexe Mehrphasen-Gemische dar, welche empfindlich auf äußere Einflüsse reagieren. Bei der Verdünnung des Abgasaerosols können Prozesse ablaufen, welche die Zusammensetzung des Abgases signifikant verändern. Somit kommt der Probenahme, insbesondere bei der Bewertung von partikelförmigen Emissionen, eine besondere Bedeutung zu. Abbildung 2-22 gibt einen Überblick über die durch den Verdünnungsprozess im Aerosol hervorgerufenen Modifikationen.

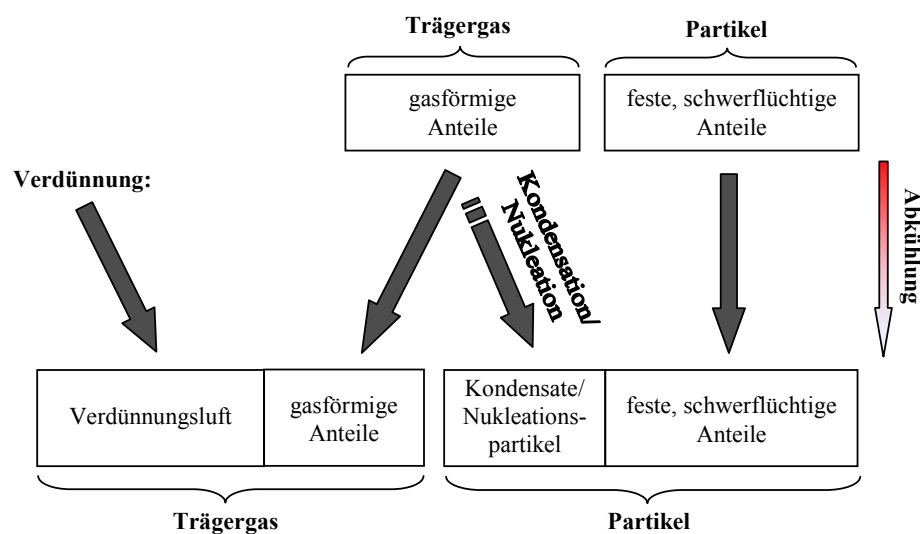


Abbildung 2-22: Veränderung der Aerosolzusammensetzung durch den Verdünnungsprozess (nach [58]).

Neben der Reduzierung der Partikelkonzentration kann speziell die Absenkung der Temperatur während der Verdünnung eine Veränderung der Partikelgrößenverteilung bewirken. Dabei können gasförmige Komponenten (insbesondere Wasser, Kohlenwasserstoffe und Schwefelsäure) durch eine möglicherweise mit der Abkühlung einhergehende Übersättigung entweder auf bereits existierende Partikel kondensieren, oder durch Nukleation neue, volatile Nukleationspartikel bilden. Besonders die Bildung dieser Nukleationspartikel wird von mehreren Faktoren, wie z.B. der Verdünnungstemperatur und -geschwindigkeit, der Feuchte und dem Verdünnungsverhältnis beeinflusst. Somit ist, speziell im Hinblick auf die Nachstellung der realen Partikel-Größenverteilungen, die möglichst

exakte Reproduktion der atmosphärischen Abgasverdünnung am Prüfstand zwar wünschenswert, aber gleichsam schwierig.

2.2.2 Beschreibung der Messkampagne / Messaufbau

Für die Untersuchungen sowohl am Rollenprüfstand als auch in der Atmosphäre wurde dasselbe Testfahrzeug, welches bereits im Abschnitt 2.1.3 beschrieben wurde, genutzt. Die Regeneration des DPF wird bei diesem Pkw mittels Nacheinspritzung und Unterbrechung der Abgasrückführung (AGR) realisiert. Für die Messkampagne wurde eine externe Triggerung der Regeneration durch entsprechenden Eingriff in die Motorsteuerung ermöglicht.

Um das Emissionsverhalten während verschiedener Motorbetriebszustände zu untersuchen, wurde ein spezieller Fahrzyklus entwickelt. Dieser bestand aus gestuften Konstantfahrt-Phasen (50, 70, 100 und 120 km/h, Gangwechsel von 4 zu 5 bei 70 km/h). In den Phasen der Geschwindigkeitsübergänge wurden entweder Vollast-Beschleunigungen oder Ausrollen im entsprechenden Gang bei Gaspedalstellung 0% vorgesehen (s. Geschwindigkeitsverlauf in Abb. 2-25). Während der Regenerationen wurde eine konstante Geschwindigkeit von 100 km/h im 6. Gang eingehalten.

Alle Tests wurden jeweils sowohl am Rollenprüfstand als auch auf einer Teststrecke durchgeführt, um ein Vergleich zwischen Labor und real-world zu ermöglichen.

2.2.2.1 Messungen auf der Teststrecke

Die real-world Messungen erfolgten auf einem Hochgeschwindigkeits-Teststreckenoval von 4 km Länge. Während der Messungen herrschten stabile Wetterverhältnisse mit geringer Luftbewegung. Zur Analyse der Abgasfahne wurde ein entsprechend ausgerüstetes Messfahrzeug, welches dem Testfahrzeug in einem Abstand von ca. 10 m folgte, eingesetzt. Als Messfahrzeug kam ein Otto-Pkw zum Einsatz, um mögliche Einflüsse auf die Hintergrund PM-Konzentration zu minimieren. Die Teststrecke wurde ausschließlich von den beiden benötigten Fahrzeugen genutzt, womit Quereinflüsse durch weitere Emissionsquellen vermieden werden sollten. Zur Sicherstellung der Vergleichbarkeit zwischen Teststreckenergebnissen und den Daten aus den Rollenprüfstandsversuchen wurde das Testfahrzeug vor jedem Test auf Betriebstemperatur gebracht.

In Abbildung 2-23 ist die Messausrüstung des zur Analyse der Testfahrzeug-Abgasfahne verwendeten Messfahrzeuges schematisch dargestellt.

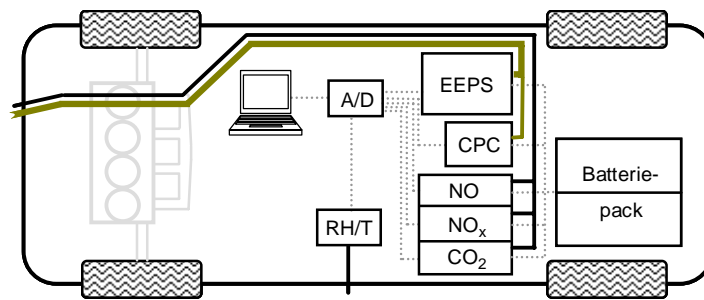


Abbildung 2-23: Messfahrzeugausstattung zur Analyse der Abgasfahne des Testfahrzeuges auf der Teststrecke.

Die Ausstattung umfasste zur Partikelanalyse ein Partikel-Größenspektrometer (EEPS) und einen optischen Partikelzähler (CPC3022), sowie jeweils ein NO-, NO_x- und CO₂ Analysator. Alle Messsignale wurden mittels eines A/D-Wandlers zu einem Laptop übertragen. Zusätzlich wurde für jeden Test die jeweilige Außentemperatur und relative Luftfeuchte gemessen, wobei konstante Werte um entsprechend ca. 25 °C und 45 % beobachtet wurden. Zur Spannungsversorgung des Messaufbaus diente ein Akku-Pack. Die Probenahme wurde über zwei separate Leitungen, welche das Probenaaerosol vom Kühlergrill des Messfahrzeuges zu den Partikel- bzw. Gasanalysatoren leiteten, realisiert. Die Zuführung zu den Gasanalysatoren erfolgte über eine 6 mm Teflon Leitung. Für die Partikelprobenahme wurde ein geerdeter, elektrisch leitfähiger Schlauch verwendet, um die elektrophoretischen Verluste der geladenen Abgaspartikel [59] zu minimieren. Mit einem Innendurchmesser von 8 mm und einer Länge von 4.4 m ergab sich bei einer Ansauggeschwindigkeit von 43 km/h die Aerosol-Aufenthaltszeit zu ca. 1.1 Sekunden. Die Evaluierung der in diesem Probenahmesystem möglichen Partikelverluste erfolgte sowohl experimentell als auch durch rechnerische Abschätzung unter Verwendung geeigneter Ansätze aus der Literatur ([60], [61]). Dabei wurden sowohl Partikelverluste durch nicht-isokinetische Probenahme als auch Diffusionsverluste berücksichtigt. Messung und Rechnung zeigten für alle zu testenden Fahr- bzw. Anströmgeschwindigkeiten übereinstimmende Ergebnisse, wobei eine Durchgangseffizienz von jeweils 90 – 100 % im Partikel-Größenbereich von 10 bis 500 nm ermittelt wurde (s. Abbildung A-5 im Anhang). Unter Berücksichtigung der beobachteten Daten-Variabilitäten sowie der hohen zu erwartenden Durchgangseffizienz wurde entschieden, keine Korrektur für diese Partikelverluste vorzunehmen. Weiterhin wurden im

Hinblick auf den zu untersuchenden Größenbereich Verluste durch Impaktion und Gravitation, welche erst im μm -Bereich wirksam werden, ebenfalls vernachlässigt.

2.2.2.2 Labormessungen

Alle Teststreckenversuche wurden auf einem dynamischen Rollenprüfstand nachgestellt. Der grundlegende Aufbau war dabei identisch zu der z.B. in Maricq et al. [62] beschriebenen Anordnung. Zur Messung der Partikelemissionen kamen, wie auch auf der Teststrecke, ein CPC und das EEPS zum Einsatz. Während der DPF-Regenerationen wurden zusätzlich CVS-Filterproben entsprechend der Standardmethode gesammelt, und anschließend durch Ionen- bzw. Gaschromatographie jeweils auf Sulfat-, Nitrat- und VOF-Gehalt analysiert. Bei der Verdünnung der Auspuffabgase zur Untersuchung der PM-Größenverteilungen wurden entweder ein Dekati FPS oder ein speziell entwickelter in-situ Verdüner [54] verwendet. Da Nukleationspartikel insbesondere während der Regeneration des DPF zu erwarten waren, wurde für diese Tests ausschließlich der in-situ Verdüner, welcher zur Simulation der atmosphärischen Verdünnung entwickelt wurde, verwendet. Alle anderen Tests (d.h. Fahrzyklen ohne DPF-Regeneration) wurden unter Benutzung des FPS-Verdüners durchgeführt, womit ebenfalls eine kontrollierte Verdünnung des Rohabgases möglich war. Mittels an den Auspuff angeschlossener on-line Gasanalytoren konnten die NO -, NO_x - und CO_2 -Konzentrationen im Rohabgas gemessen werden.

2.2.3 Ergebnisse und Vergleich mit den Labormessungen

2.2.3.1 Volllast Beschleunigungszyklus

Wie bereits erläutert, wurde ein speziell entwickelter Beschleunigungszyklus zur Untersuchung der PM-Emissionen verwendet. Dieser Fahrzyklus beinhaltete Volllast-Motorbetriebszustände (Volllast-Beschleunigungen), und war somit deutlich aggressiver als der standard-NEDC. Durch sein Layout erlaubte der verwendete Beschleunigungszyklus die Untersuchung des Emissionsverhaltens über einen weiten Bereich der möglichen Fahrzustände.

Um eine systematische Auswertung der erfassten Daten des angewendeten Fahrzyklusses zu erlauben, wurde dieser zur Datenanalyse in drei Phasen aufgeteilt. Diese waren: Volllast-Beschleunigung (jeweils Mittelwerte aller Beschleunigungsphasen), Konstantfahrt (jeweils Mittelwerte aus 100 und 120 km/h Phasen) und Ausrollen (jeweils Mittelwerte aller

Übergänge zu geringeren Geschwindigkeiten bei Gaspedalstellung 0%). Abbildung 2-24 zeigt die auf der Teststrecke hinter dem Testfahrzeug gemessenen und jeweils über die entsprechende Phase gemittelten Partikel-Größenverteilungen. Zusätzlich ist die durchschnittliche Hintergrund-Verteilung, welche durch mehrere Solofahrten des Messfahrzeuges auf dem Testoval bestimmt wurde, eingezeichnet.

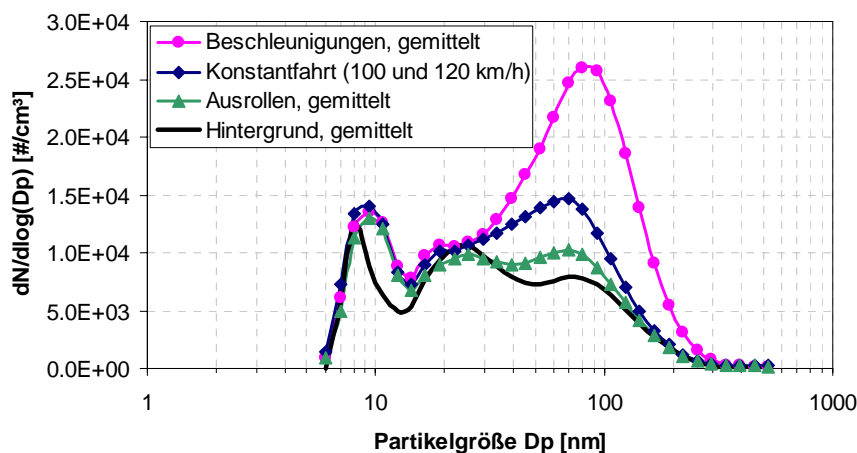


Abbildung 2-24: *Mittlere Partikel-Größenverteilungen von mehreren auf der Teststrecke gemessenen Beschleunigungszyklen. Die abgebildeten Daten zeigen die Größenverteilungen in der Abgasfahne ca. 10 m hinter dem Testfahrzeug für verschiedene Fahrzustände. Zum Vergleich ist die mittlere Hintergrund-Verteilung eingezeichnet.*

Es zeigt sich, dass auch in kurzem Abstand hinter dem Testfahrzeug (ca. 10 Meter) die gemessenen Partikelkonzentrationen während der Konstantfahrt- und Ausrollphasen kaum die Hintergrundkonzentration überstiegen. Nur bei den Volllast-Beschleunigungen wurden erhöhte Konzentrationen sichtbar. Dies unterstreicht die hohe Effektivität der DPF-Technologie. Um diese real-world Daten mit entsprechenden Ergebnissen vom Rollenprüfstand vergleichen zu können, mussten alle in der Umgebungsluft gemessenen PM-Konzentrationen mittels der jeweiligen Verdünnungsfaktoren auf die Verhältnisse im Auspuff umgerechnet werden. Außerdem war eine Subtraktion der Teststrecken-Hintergrundkonzentrationen notwendig, da während der Messungen am Rollenprüfstand nahezu partikelfreie Verdünnungsluft verwendet wurde. Um die benötigten zeitabhängigen Verdünnungsfaktoren für die real-world Messungen zu bestimmen wurde CO_2 als Tracergas verwendet. Dabei konnte davon ausgegangen werden, dass das CO_2 -Emissionsverhalten des

verwendeten Testfahrzeuges auf Teststrecke und Rollenprüfstand identisch ist. Mit dieser Annahme konnten die real-world Verdünnungsfaktoren aus den jeweiligen Quotienten aus Rollenprüfstands-CO₂ (gemessen am Auspuff) und real-world CO₂ (gemessen am Probeneinlass) abgeschätzt werden. Die so erhaltenen Verdünnungsfaktoren, welche ca. 2000 betragen, wurden mittels NO_x-Tracerdaten überprüft und bestätigt.

In Abbildung 2-25 ist ein Beispiel für ein typisches Ergebnis eines Beschleunigungszyklusses gegeben. Zum Vergleich sind sowohl real-world Daten (links) als auch die entsprechenden Prüfstandsergebnisse (rechts) gezeigt.

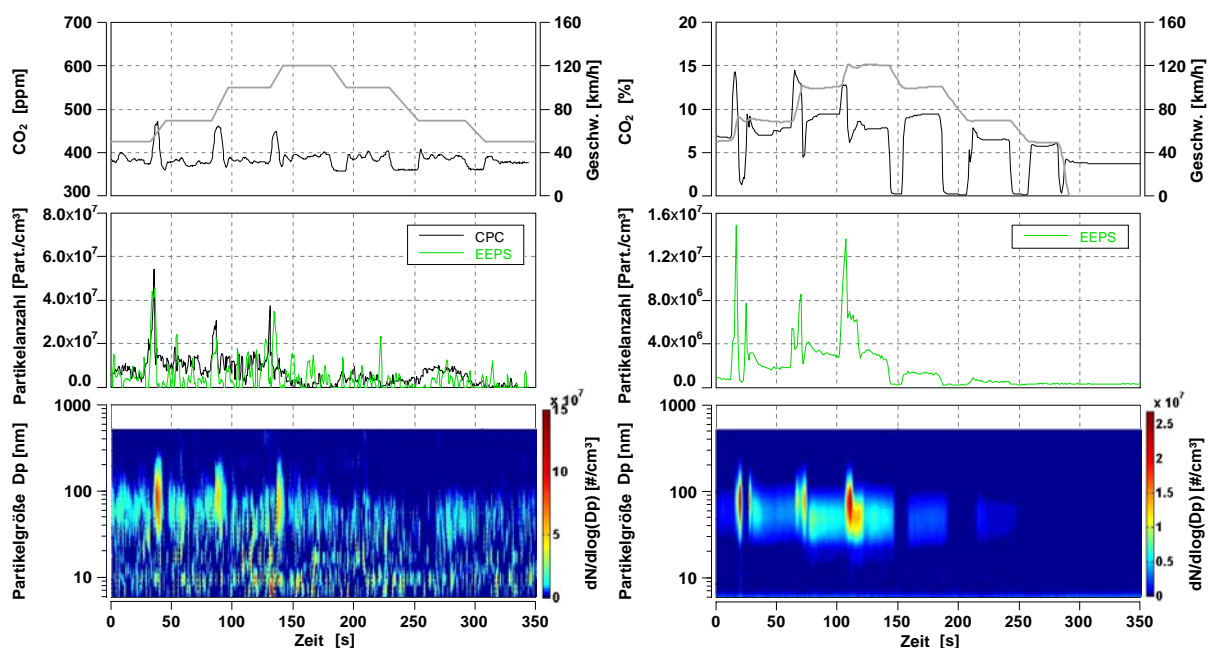


Abbildung 2-25: Zeit aufgelöste Partikel-Größenverteilungen und Gesamt-Partikelanzahl für einen Volllast-Beschleunigungszyklus auf der Teststrecke (links) und auf dem Rollenprüfstand (rechts). Alle Partikeldaten sind auf den Auspuff bezogen (Hintergrund subtrahiert). Geschwindigkeitsverlauf und CO₂-Konzentration (am Probeneinlass) sind ebenfalls dargestellt.

Alle dargestellten Partikel-Daten wurden, wie beschrieben, auf die Verhältnisse am Auspuff umgerechnet und hintergrundbereinigt (real-world Daten). Das relativ starke Signalrauschen sowohl im Konturplott als auch bei der Gesamt-Partikelanzahl der real-world Daten resultierte hauptsächlich aus zeitlichen und räumlichen Variationen des tatsächlichen Hintergrundaerosols. Das eigentliche Nutzsignal, welches sich aus der Differenz von

gemessener Gesamtkonzentration und mittlerer Hintergrundkonzentration ergab, war klein im Vergleich zur Variation des tatsächlichen Hintergrundes. Die Abschätzung des real-world Verdünnungsfaktors stellt eine zusätzliche Fehlerquelle dar, insbesondere bei hohen Gradienten der Verdünnung.

Bei den am Rollenprüfstand durchgeführten Tests wurden solche Quereinflüsse minimiert. Dadurch war die Messung selbst niedrigster Emissionen möglich, was sich im geringen Rauschen der entsprechenden Messergebnisse widerspiegelt (s. Abb. 2-25 rechts). Haupteinflussgröße war hier der Verdünnungsprozess, welcher zu Verfälschungen bzw. Abweichungen von der Realität führen kann. Dabei können besonders durch unkontrollierte Akkumulation, Kondensation, Nukleation und Partikelverluste unerwünschte Modifikationen des zu messenden Aerosols auftreten.

Unter Berücksichtigung aller genannten Störeinflüsse zeigt die Gegenüberstellung von real-world Daten und den Ergebnissen vom Rollenprüfstand in Abbildung 2-25 recht gute Übereinstimmungen. Es ist sowohl ein ähnlicher Verlauf der gemessenen Partikel-Anzahlemissionen als auch relativ gute Deckung bei den entsprechenden Größenverteilungen zu erkennen. Leichte Unterschiede ergeben sich beim Vergleich der absoluten Partikel-Anzahlen, welche bei den Rollendaten etwas niedrigere Werte zeigen. Bedenkt man jedoch mögliche Test zu Test Variationen und das ungünstige Verhältnis zwischen Nutzsignal und Störeinflüssen bei den real-world Messungen, so kann die generelle Übereinstimmung zwischen Labor und Teststrecke als gut bewertet werden.

Einen Überblick über die Ergebnisse aller durchgeführten Tests gibt Abbildung 2-26. Dabei sind jeweils die durchschnittlichen Größenverteilungen (auf den Auspuff bezogen und hintergrundbereinigt) für sämtliche getestete Beschleunigungszyklen dargestellt. Die Angaben erfolgen als zeitbasierte Emissionsfaktoren, wobei sowohl Daten für einen beladenen DPF (oben) als auch für einen unbeladenen DPF (direkt nach DPF-Regeneration, unten) gezeigt sind.

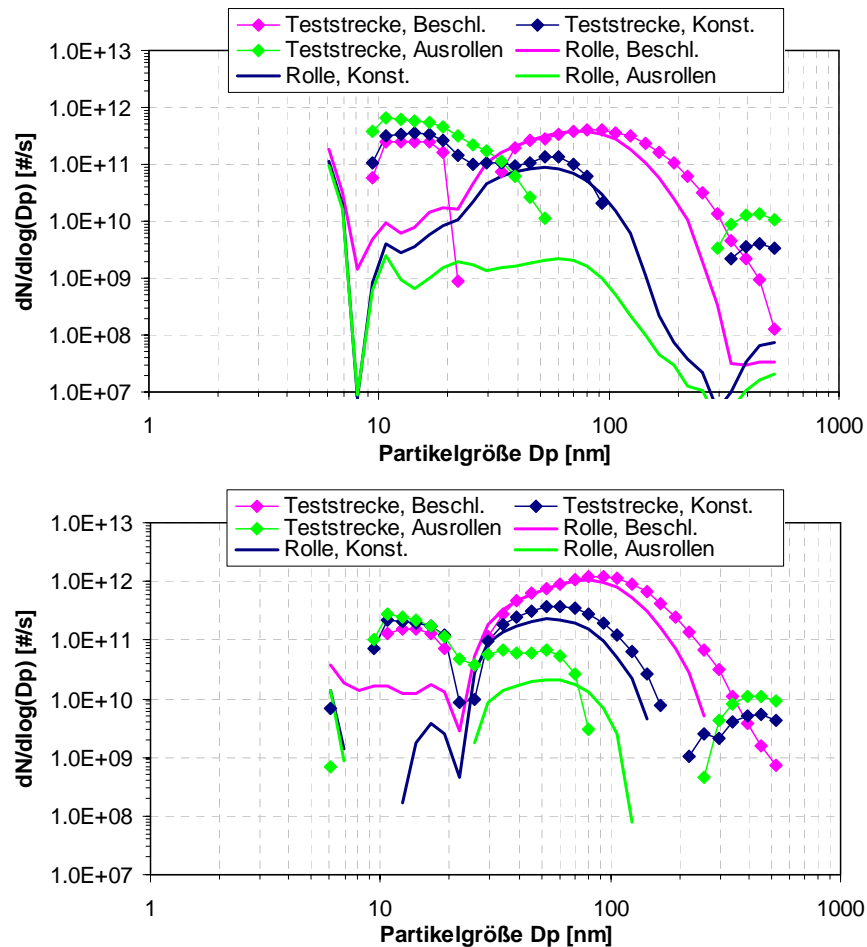


Abbildung 2-26: Mittlere Partikel-Größenverteilungen gemessen auf Teststrecke und am Rollenprüfstand für beladenen (oben) und unbeladenen DPF (unten). Es sind Größenverteilungen für Vollast-Beschleunigungen, Konstantfahrt (120 und 100 km/h Mittelwert) und Ausrollen (Schubbetrieb), bezogen auf den Auspuff (Hintergrund subtrahiert), dargestellt.

Labor- und Teststreckendaten zeigen, abhängig vom Beladungszustand, einen gleichen Trend. Wie erwartet sind die Emissionen für den beladenen DPF geringer als im unbeladenen Zustand. Der Grund dafür ergibt sich aus der gebildeten Rußschicht im beladenen DPF, welche eine Erhöhung der Filtrationseffizienz bewirkt. Weiterhin ist in beiden Datensätzen eine Verschiebung der Größenverteilungs-Maxima hin zu größeren Partikeldurchmessern mit zunehmender Motorlast zu sehen. Mögliche Ursachen dafür sind eine ineffizientere motorische Verbrennung durch ein verringertes Verbrennungsluft-Verhältnis bei höherer Motorlast und damit einhergehende Beschleunigung der Partikelagglomeration aufgrund höherer PM-Konzentrationen im Auspuffstrang. Die bei den real-world Daten fehlenden Datenpunkte spiegeln die Unsicherheiten bei der Hintergrundsubtraktion wider, welche in

Verbindung mit den teilweise sehr geringen Fahrzeugemissionen zu negativen Werten bei den berechneten Emissionsfaktoren führten. Für die angewendete Messprozedur ergab sich daraus eine praktische Nachweisgrenze von ca. $1 \times 10^9 - 1 \times 10^{10} \text{ s}^{-1} [\text{dN}/\text{dlog}(D_p)]$ für die Ermittlung der größenabhängigen Emissionsfaktoren.

Die systematisch schmalere Größenverteilungen der Labormessungen mit insbesondere verringerten Anzahlen an Partikeln im Bereich $D_p > 100 \text{ nm}$ könnten zum Einen durch eine Veränderung des Hintergrundaerosols während der Teststreckenmessungen hervorgerufen sein. Zum Anderen könnte dies auf einen realen Verdünnungseinfluss hindeuten. Partikelverluste im Labor-Verdünnungssystem erscheinen als Ursache allerdings eher unwahrscheinlich, da Partikel speziell in diesem Größenbereich besonders unempfindlich gegenüber den bekannten Verlustmechanismen (Diffusion, Impaktion, Gravitation) sind. Für eine genaue Klärung der Gründe für diese Diskrepanz sind weitere Untersuchungen notwendig. Ein weiterer Unterschied zwischen Labor und Teststrecke zeigt sich im Partikel-Größenbereich $D_p < 20 \text{ nm}$ (Nukleationspartikel). Diese Abweichung deutet möglicherweise auf einen tatsächlichen Unterschied zwischen realer Verdünnung in der Atmosphäre und der Laborverdünnung hin. Dabei könnten besonders nukleationshemmende Faktoren und/oder Diffusionsverluste bei der Prüfstandsverdünnung eine Rolle spielen. In früheren Studien von Vogt et al. [63] und Wahlin et al. [64] wurden ebenfalls Nukleationspartikel an Straßen beobachtet, welche im Abgaslabor nicht reproduziert wurden. Andererseits fallen die hier auf der Teststrecke beobachteten Konzentrationen an Nukleationspartikeln vergleichsweise gering aus. Schneider et al. [65] fand an einem Autobahnparkplatz maximale Partikel-Konzentrationen um $1 \times 10^5 \text{ cm}^{-3} [\text{dN}/\text{dlog}(D_p)]$, welche um ca. Faktor 7 über dem hier in Auspuffnähe gemessenen Maxima von $1.5 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} [\text{dN}/\text{dlog}(D_p)]$ liegen (vgl. Abb. 2-24, Vergleich mit 100/120 km/h).

Vergleicht man die absoluten Emissionsfaktoren des beschriebenen aggressiven Beschleunigungszyklusses mit denen des moderaten NEDC, so zeigen sich deutliche Unterschiede. Dem Maximum des NEDC von $1 \times 10^{10} \text{ s}^{-1} [\text{dN}/\text{dlog}D_p]$ (vgl. Abb. 2-20) stehen beim Beschleunigungszyklus um bis zu Faktor 50 höhere Werte (s. Abb. 2-26) gegenüber. Zur Abbildung der beim realen Fahrbetrieb auftretenden Emissionen erscheint eine Kombination beider Fahrzyklen sinnvoll.

2.2.3.2 DPF Regeneration

Die Messungen zur DPF-Regeneration erfolgten bei einer konstanten Geschwindigkeit von 100 km/h im 6. Gang. Vor jedem Test wurde sowohl im Labor als auch auf der Teststrecke eine Stabilisierungszeit von 5 Minuten eingehalten, um vergleichbare Bedingungen (insbes. bzgl. aller relevanten Temperaturen) sicherzustellen. Abbildung 2-27 zeigt eine Gegenüberstellung von Rollenprüfstands- (rechts) und real-world Daten (links), welche bei der Regeneration eines beladenen DPF gemessen wurden. Die dabei im Labor gewählte Verdünnung von ca. 1:1700 war vergleichbar zu den auf der Teststrecke ermittelten Werten um ca. 1:2000.

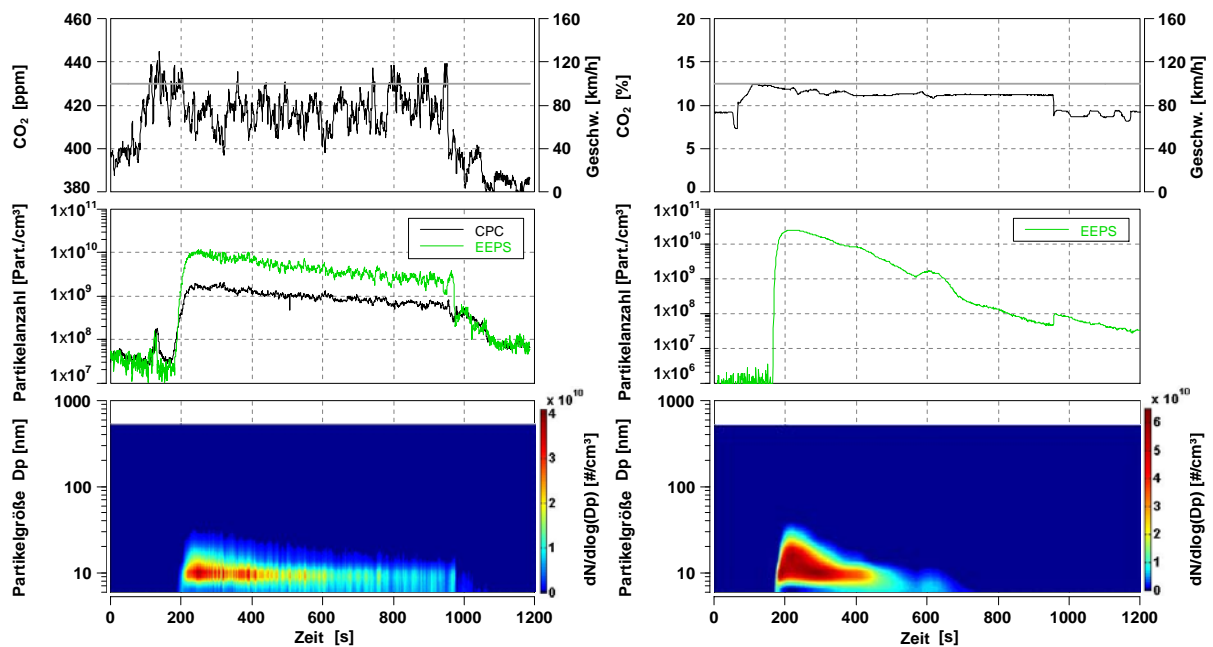


Abbildung 2-27: Zeitaufgelöste Partikel-Größenverteilungen und Gesamtpartikelanzahl für eine DPF-Regeneration bei beladenem DPF auf der Teststrecke (links) und auf dem Rollenprüfstand (rechts, in-situ Verdünnung). Alle Partikeldaten sind auf den Auspuff bezogen (Hintergrund subtrahiert). Geschwindigkeitsverlauf und CO₂-Konzentration (am Probeneinlass) sind ebenfalls dargestellt.

Alle dargestellten Werte wurden durch Multiplikation mit den jeweiligen Verdünnungen auf den Auspuff bezogen, um einen direkten Vergleich zwischen Labor und Teststrecke zu ermöglichen. Bei beiden Datensätzen ist eine deutliche Zunahme an Nukleationspartikeln mit

einem Größenverteilungs-Maximum um $D_p \approx 10$ nm zu erkennen. Der Unterschied zwischen CPC und EEPS bezüglich der Gesamt-Partikelkonzentration bei den real-world Daten ist auf den Übergang des CPC zum unkalibrierten optischen Modus (wg. der sehr hohen Anzahl-Konzentrationen) zurückzuführen. Dadurch wurden die Partikel-Anzahlkonzentrationen vom CPC unterschätzt. Legt man die EEPS-Messdaten zugrunde, so zeigt sich eine relativ gute Übereinstimmung von Labor- und real-world Ergebnissen hinsichtlich der Partikel-Anzahlen sowie der Lage der Größenverteilungen. Die Verbreiterung der am Rollenprüfstand mittels in-situ Verdünnung gemessenen Partikel-Größenverteilung kann auf Unvollkommenheiten bei der Simulation des realen Verdünnungsprozesses zurückgeführt werden. Insbesondere verstärkte Koagulation, z.B. aufgrund einer zu geringen Verdünnungsgeschwindigkeit, könnte dabei einen entscheidenden Einfluss dargestellt haben. Bedenkt man jedoch die hohe Komplexität der ablaufenden Vorgänge, so kann das Resultat der eingesetzten in-situ Verdünnung als zufriedenstellend bewertet werden.

In Abbildung 2-28 sind die mittleren Partikel-Größenverteilungen für die Regeneration des DPF bei unterschiedlichen Beladungszuständen gezeigt. Die Mittelwertbildung erfolgte dabei über ca. 15 Minuten, was der typischen Dauer einer vollständigen Regeneration entsprach.

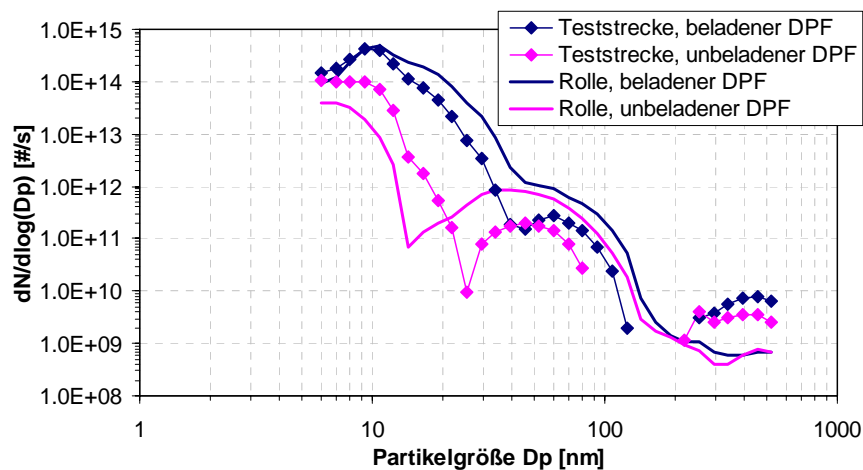


Abbildung 2-28: Vergleich der mittleren Partikel-Größenverteilungen während DPF Regeneration auf der Teststrecke und am Rollenprüfstand (in-situ Verdünnung). Es sind Größenverteilungen für beladenen und unbeladenen DPF, bezogen auf den Auspuff (Hintergrund subtrahiert), dargestellt.

Die auf dem Rollenprüfstand ermittelten Größenverteilungen zeigen einen ähnlichen Trend wie die Teststrecken-Ergebnisse. Im Vergleich zur 100/120 km/h Konstantfahrt ohne Regeneration (vgl. Abb. 2-26) zeigen sich um 3 – 4 Größenordnungen höhere Anzahlen an Nukleationspartikeln, wohingegen die Anzahl an Rußpartikeln (Akkumulationsmode um $D_p = 60$ nm) nahezu unverändert bleibt. Dieses Ergebnis stimmt qualitativ mit den Beobachtungen einer Untersuchung von Giechaskiel et al. [50] überein, worin DPF-Regenerationen während transients Motorbetriebszustände am Prüfstand untersucht wurden.

Aus den in Abbildung 2-28 dargestellten Größenverteilungen kann weiterhin ein Zusammenhang zwischen der Ausprägung der Nukleationsmode und dem Beladungszustand des DPF vor der Regeneration vermutet werden. Um dies genauer zu untersuchen, und somit ein besseres Verständnis der zur Bildung von Nukleationspartikeln führenden Prozesse zu erlangen, wurden weitere Laborversuche mit verschiedenen stark beladenen DPF durchgeführt. Die dabei entstandenen PM-Emissionen wurden zusätzlich durch Filtersammlung und anschließender chemischer Analyse auf ihren Sulfatgehalt hin untersucht. Der sich daraus ergebende Zusammenhang zwischen der Anzahl an emittierten Nukleationspartikeln und der im gesamt-PM enthaltenen Sulfatmasse ist in nachfolgender Abbildung verdeutlicht.

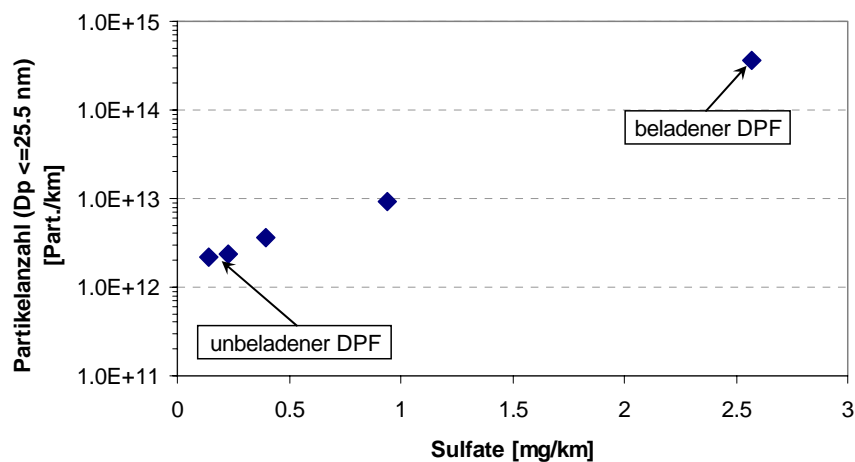


Abbildung 2-29: Korrelation zwischen der Anzahl von Nukleations-Mode Partikeln und dem Sulfatgehalt der emittierten Partikel für DPF Regenerationen bei verschiedenen Beladungszuständen. Alle Messungen erfolgten am Rollenprüfstand unter Verwendung der in-situ Verdünnung.

Aus den in Abbildung 2-29 gezeigten Daten geht eine deutliche Korrelation zwischen emittierter Sulfatmasse und der zugehörigen Anzahl an Nukleationspartikeln hervor. Dabei steigen die entsprechenden Werte mit zunehmender DPF-Beladung an. Campbell et al. [66] stellten ebenfalls ein Zusammenhang zwischen Sulfat- und PM-Emissionen während einer DPF-Regeneration fest. Eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten könnte die Speicherfähigkeit des DPF bzgl. im Motorabgas enthaltener Sulfat-Komponenten liefern. Dabei werden während des normalen Motorbetriebes möglicherweise aus Motoröl oder Kraftstoff stammende Schwefelverbindungen im DPF abgelagert, welche durch die mit der Regeneration verbundenen hohen Temperaturen wieder freigesetzt werden können. Mit steigender DPF-Beladung würde somit auch die darin gespeicherte Schwefelmasse zunehmen, was während der Regeneration wiederum zur vermehrten Bildung von Schwefelsäure und den daraus entstehenden Nukleationspartikeln führen könnte. Die Tatsache, dass keine entsprechende Korrelation zur Emission an Kohlenwasserstoffen bzw. Nitraten festgestellt werden konnte unterstreicht die besondere Bedeutung der Sulfate bei der Bildung von Nukleationspartikeln im Abgas von Diesel-Pkws. Diese Schlussfolgerung wird u.a. durch Erkenntnisse von Scheer et al. [67] und Schneider et al. [68] gestützt, welche den Sulfaten ebenfalls eine bedeutende Rolle bei der Entstehung von Nukleationspartikeln zuordnen. Du und Yu [69] beobachteten gute Übereinstimmung zwischen Experimenten mit einem kontinuierlich regenerierenden DPF und modellierter Nanopartikel-Größenverteilung bei Verwendung eines $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ Modells zur homogenen Nukleation (schwefelarmer Kraftstoff, 15 ppm). Im Vergleich zu entsprechenden Abgasmessungen an einem Fahrzeug ohne DPF (Kraftstoff-Schwefelgehalt < 10 ppm) erhielten Uhrner et al. [70] mittels ihres $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ Modells unrealistisch niedrige Wachstumsraten der Nukleationspartikel. Zur Modellierung der tatsächlich gemessenen Verteilungen war die zusätzliche Einbeziehung von Schmieröl-Schwefel, die Berücksichtigung der Freisetzung von im Abgassystem gespeicherten Schwefelkomponenten sowie die Einbindung von weiteren volatilen Spezies (z.B. VOF) notwendig.

Abbildung 2-30 zeigt zusammenfassend eine ausführliche Analyse der während einer DPF-Regeneration entstehenden partikulären Emissionen. Zusätzlich zum PM-Größenspektrum und der Gesamtpartikelanzahl ist sowohl die PM-Masse (vor- und nach DPF) als auch die Anzahl der emittierten nicht-volatilen Partikel gezeigt. Die Messung wurde am Rollenprüfstand durchgeführt, wobei für die Verdünnung der Auspuffabgase ein Ejektor-

Verdünner zum Einsatz kam. Zur Messung der nicht-volatilen Partikelfraktion wurde die in Kapitel 2.1.1.1 beschriebene PMP-Messanordnung verwendet.

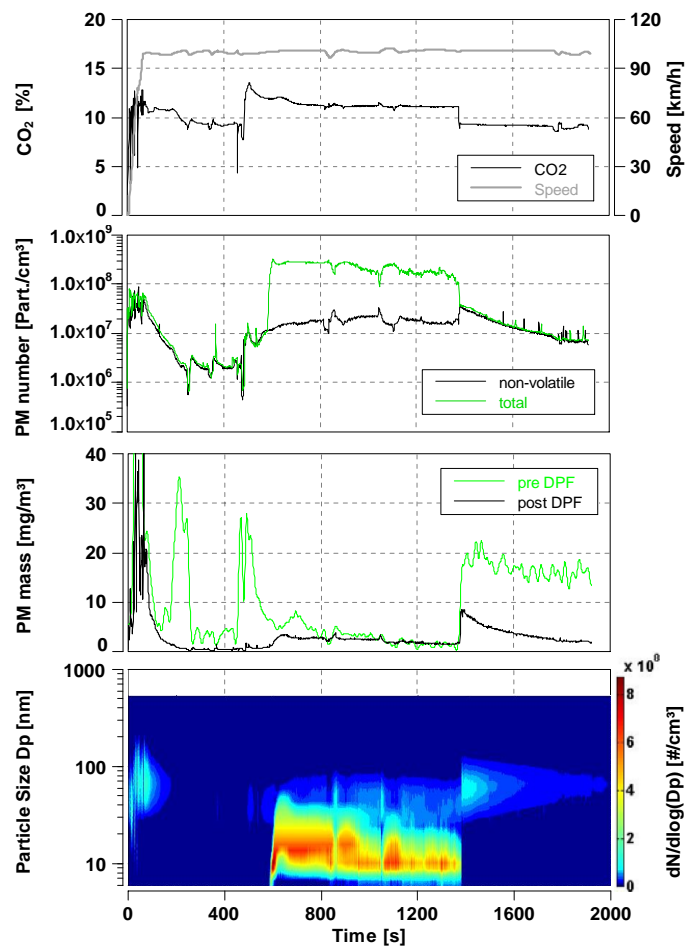


Abbildung 2-30: Zeitaufgelöste Partikel-Größenverteilungen und Partikelanzahl (Gesamtanzahl und Anzahl nicht-volatiler Partikel) für eine DPF-Regeneration mit beladenem DPF auf dem Rollenprüfstand (Ejektor-Verdünnung). Alle Partikeldaten sind auf den Auspuff bzw. auf vor-DPF Position bezogen. Geschwindigkeitsverlauf, PM-Masse (vor- und nach DPF) und CO₂-Konzentration sind ebenfalls dargestellt.

Die Regeneration wurde nach einer Stabilisierungszeit von ca. 300 Sekunden initialisiert, und startete nach Erreichen der Entzündungstemperatur des angesammelten Rußes, nach etwa 490 s. Weitere 100 s später zeigte sich ein starker Anstieg der emittierten Gesamt-Partikelanzahl, wobei die Anzahlkonzentration der nicht-volatilen Partikel (hauptsächlich Rußpartikel) nur

relativ wenig zunahm. In Verbindung mit den im Größenspektrum angezeigten kleinen Partikeldurchmessern um $D_p \approx 15$ nm ist dies ein deutliches Indiz auf die Produktion von Nukleationspartikeln. Damit wird die Vermutung bestärkt, dass die überwiegende Anzahl der während einer Regeneration freigesetzten Partikel aus Sulfaten gebildete Nukleationspartikel sind. Nach etwa 1380 s wurde die Regeneration durch automatische Beendigung der Nacheinspritzung und Zuschalten der Abgasrückführung (AGR) beendet. Die damit verbundene Reduzierung der DPF-Temperatur führte zur Beendigung der Bildung von Nukleationspartikeln. Gleichzeitig nahm die Emission von Rußpartikeln (Masse und Anzahl) aufgrund der Erhöhung der AGR-Rate und damit einhergehender Verringerung des Verbrennungsluftverhältnisses zu. Mit zunehmender Zeit verringerte die nach dem DPF gemessene PM-Massekonzentration bei gleichbleibender Konzentration im Rohabgas (vor DPF). Diese Zunahme der DPF-Filtereffizienz von Anfangs durchschnittlich 67% (in den ersten drei Minuten nach Regeneration) auf über 90% nach ca. 10 Minuten, kann mit der Ausbildung eines Ruß-Layers bei zunehmender Beladung des DPF begründet werden und stimmt gut mit dem in Abbildung 2-26 gezeigten Trend überein. Mit fortschreitender Beladung des DPF stieg die Filtereffizienz auf das erwartete Niveau von über 99% an.

Eine weitere interessante Beobachtung ist die im Vergleich zur realen atmosphärischen Verdünnung bzw. in-situ Verdünnung (vgl. Abb. 2-27) um 1 bis 2 Größenordnungen verminderte absolute Anzahl an Nukleationspartikeln bei der Verwendung des Ejektor-Verdünners (2×10^8 Part./cm³ vs. 10^9 - 10^{10} Part./cm³). Die Ursache dafür ergibt sich aus dem Ejektor-Verdünnungsprozess (insbesondere bzgl. Verdünnungstemperatur und Flussverhältnis), welcher wahrscheinlich zur Unterdrückung der Nukleation führt. Damit wird die Wichtigkeit einer angepassten Abgasverdünnung zur realitätsnahen Untersuchung der Partikelemissionen verdeutlicht. Dies gilt insbesondere bei der Messung von Nukleationspartikeln, welche einen dominierenden Einfluss auf die Gesamt-Partikelanzahl darstellen können.

2.2.3.3 Benzinfahrzeug

Zum Vergleich mit den Partikelemissionen des untersuchten DPF Dieselfahrzeuges wurden zusätzlich Messungen mit einem Benzinfahrzeug auf der Teststrecke durchgeführt. Dabei kamen die gleichen Bedingungen und Prozeduren wie unter 2.2.2.1 dargestellt zur Anwendung. Als Testfahrzeug wurde ein Pkw mit einem herkömmlichen

saugrohreinspritzenden Ottomotor (EU-4, 1.4 Liter Hubraum, 51 kW, Baujahr 2007) verwendet, und während eines Volllast-Beschleunigungszyklus untersucht.

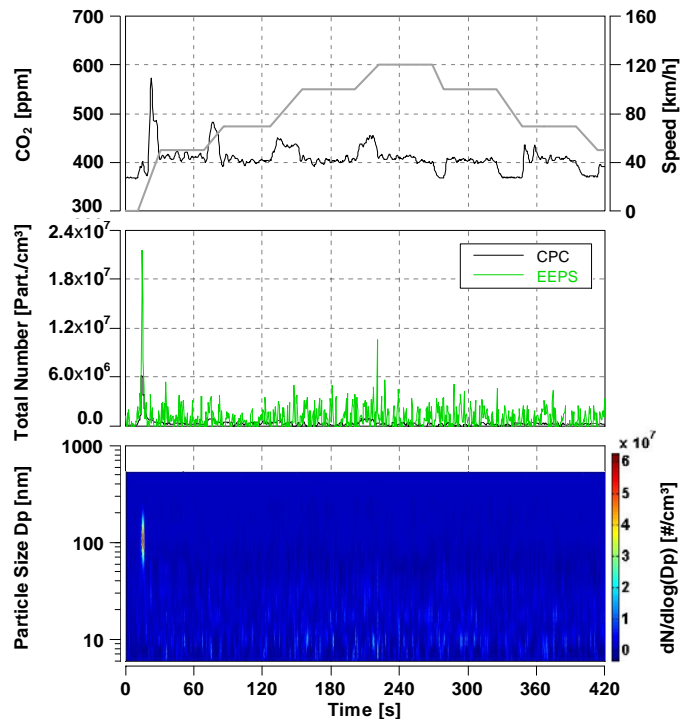


Abbildung 2-31: Zeitaufgelöste Partikel-Größenverteilungen und Gesamtpartikelanzahl für ein Benzinfahrzeug während eines Volllast-Beschleunigungszyklusses auf der Teststrecke. Alle Partikeldaten sind auf den Auspuff bezogen (Hintergrund subtrahiert). Geschwindigkeitsverlauf und CO_2 -Konzentration (am Probeneinlass) sind ebenfalls dargestellt.

Wie erwartet zeigten sich trotz messbarer CO_2 Emissionen, welche als Indikator für eine Probenahme in der Abgasfahne dienen, keine PM-Emissionen außerhalb des Messgeräterausschens. Ausschließlich während der kurzen Zeit des Motorstarts waren PM-Emissionen im Partikel-Durchmesserbereich um 100 nm nachweisbar. Dieses Verhalten kann mit der homogenen Gemischaufbereitung im Ottomotor erklärt werden, wodurch die Partikelbildung im Vergleich zum direkteinspritzenden Motor drastisch verringert wird. Während des Motorstarts erfolgte wahrscheinlich eine deutliche Gemischanfettung, welche zu ungünstigeren Verbrennungsverhältnissen führte, und somit die beobachteten PM-Emissionen bewirkte.

3 Grundlagenuntersuchungen zu Resuspension und Abrieb

Durch die EU Richtlinie 1999/30/EG erfolgt eine Regulierung der PM_{10} Konzentration in der Außenluft, um den Erkenntnissen bezüglich einer potentiellen Gesundheitsgefährdung durch luftgetragene Partikel Rechnung zu tragen. Viele europäische Städte haben massive Probleme die damit vorgegebenen Grenzwerte einzuhalten, und sind deshalb bestrebt wirkungsvolle PM_{10} Minderungsmaßnahmen einzuführen. Im Rahmen der damit verbundenen Ursachenforschung gelangen die vom Straßenverkehr verursachten, nicht verbrennungsbedingten PM-Emissionen zunehmend in den Blickpunkt des Interesses.

3.1 Derzeitiger Wissensstand

3.1.1 Allgemeines / Eigenschaften

Neben den Motorabgasemissionen stellen die vom Straßenverkehr durch Abrieb und Resuspension (Wiederaufwirblung) emittierten Partikel eine bedeutende Quelle für städtisches PM_{10} dar (z.B. [71], [72], [73]). Die durch Fahrzeuge bei Abriebprozessen erzeugten Partikel werden nicht vollständig durch Luftbewegungen von den Straßen wegtransportiert. Sie können sowohl an Teilen der Fahrzeuge selbst (z.B. Bremsstaub an Felgen) als auch auf der Fahrbahn abgelagert werden. Ursachen für die Belegung der Straßenflächen mit Partikeln können somit einerseits Beiträge des Straßenverkehrs selbst sein, andererseits können aber auch durch Luftbewegungen transportierte Partikel anderer Emittenten auf der Fahrbahnoberfläche sedimentiert werden. Die durch fahrzeuginduzierte Turbulenz und Rollbewegung der Reifen hervorgerufene Resuspension dieser abgelagerten Partikel kann damit zum wiederholten Eintrag von Teilchen verschiedenster Partikelquellen in die Luft führen. Als bedeutendste Quellen der auf Fahrbahnen abgelagerten Partikel werden angenommen:

- staubende Fahrzeugladungen
- verschmutzte Reifen
- Eintrag durch Abwaschen von verschmutzten Kfz (insbesondere aus Radkästen) bei Regen

- Staubeintrag von Baustellen
- Staubeintrag von entfernten Quellen
- Straßenstreuung im Winter
- durch Kfz erzeugter Abrieb

Der Anteil von Resuspensions- bzw. Abriebpartikeln an der urbanen PM₁₀ Partikelbelastung ist hochvariabel und wurde in verschiedenen Studien z.B. mit 20% – 65% abgeschätzt ([74], [75], [76], [77]). Da diese Partikel aus mechanischen Zerkleinerungsprozessen entstammen (vgl. Abschnitt 1.2.2), weisen deren Größenverteilungen typischerweise Maxima um ca. 1 bis 3 µm ([78]) auf. Aus Labor- und Straßenfahrt- Messungen ist aber auch bekannt, dass neben groben Partikeln, insbesondere beim Bremsen, ebenfalls Partikel mit $D_p < 100$ nm entstehen können [79]. Als Inhaltsstoffe von Resuspensions- und Abriebpartikeln wurden überwiegend mineralisches Material geologischen Ursprungs in Verbindung mit geringen Anteilen von Kohlenstoffverbindungen hauptsächlich aus Reifenabrieb und Spuren von Metallen, insbesondere aus Bremsenabrieb, gefunden (z.B. [80], [81], [82]).

3.1.2 Einflussgrößen

Sowohl Abrieb als auch Resuspension werden von vielfältigen Faktoren beeinflusst. Die je Zeiteinheit durch Abriebprozesse emittierte Partikelmenge ist insbesondere abhängig von den Materialeigenschaften und dem Zustand der Reibpartner, den Umgebungsbedingungen (wie z.B. Temperatur und Feuchte), sowie von den Reibkräften selbst, welche wiederum von der Fahrsituation abhängen [83]. Die Resuspension wird entscheidend von Fahrzeug, Fahrbahn und den Umgebungsbedingungen beeinflusst. So variiert die Intensität der Resuspension mit der Größe und Form des turbulenten Wirbels hinter dem Fahrzeug ([84], [85]). Die Ausbildung dieses Wirbels hängt wiederum sowohl von der Form als auch von der Fahrgeschwindigkeit des betrachteten Fahrzeuges ab. Daraus folgt, dass Lkw aufgrund ihrer aerodynamischen Eigenschaften unter gleichen Bedingungen deutlich höhere Resuspensionsbeiträge leisten als Pkw. Abu-Allaban et al. [86] fanden während Messungen an Straßen um ca. Faktor 10 höhere PM₁₀ bzw. PM_{2,5} Resuspensions-Emissionen für Lkw im Vergleich zu den entsprechenden Pkw-Emissionen. Ebenso nimmt die fahrzeuginduzierte Turbulenz mit steigender Fahrgeschwindigkeit zu, wodurch eine Verstärkung der Resuspension zu beobachten ist [80]. Messungen von Etyemezian et al. [87] ergaben eine Proportionalität zwischen der hinter einem Fahrzeug gemessenen Massekonzentration an

aufgewirbeltem Material und der 3. Potenz der Fahrgeschwindigkeit. Der entsprechende massebezogene PM_{10} Resuspensions-Emissionsfaktor stieg hingegen linear mit der Geschwindigkeit an. Neben den genannten fahrzeugbezogenen Einflussfaktoren ist die Fahrbahnoberfläche von besonderer Bedeutung. Zur Charakterisierung der Fahrbahneigenschaft bzgl. der Resuspensionsstärke kann die Größe „Emissionspotential“ verwendet werden [88]. Dieser Wert gibt den geschwindigkeitsbezogenen Emissionsfaktor in z.B. $(\text{mg}/\text{km}) / (\text{km}/\text{h})$ an. Da von einem linearen Zusammenhang zwischen Geschwindigkeit und resuspensionsbedingter PM-Masseemission ausgegangen wird, ist dieser Wert ausschließlich fahrzeug- und fahrbahnspezifisch, wobei Feuchtigkeit und Temperatur als Fahrbahneigenschaften angesehen werden. Somit lassen sich, unter Verwendung desselben Fahrzeuges, Straßen im Hinblick auf deren Resuspensionseigenschaften untereinander vergleichen, oder Veränderungen bei variierenden Umgebungsbedingungen (z. B.: Niederschlag oder Streuung im Winter) untersuchen. Entsprechende Betrachtungen zeigten, dass vielbefahrene Straßen mit hoher Geschwindigkeit des Verkehrs, wie z.B. Autobahnen, ein deutlich geringeres Emissionspotential besitzen als Straßen mit weniger Verkehrsaufkommen und geringeren Verkehrsgeschwindigkeiten. Die jeweiligen streckenbezogenen Emissionsfaktoren waren jedoch, aufgrund des Unterschiedes der tatsächlichen Geschwindigkeiten, vergleichbar [89]. Als weitere wichtige Einflussfaktoren wurde die Feuchte der Fahrbahnoberfläche und die Menge an Streusand (Winter) gefunden, wobei sich erhöhte Oberflächenfeuchten und verringerte Streusandmengen reduzierend auf die Resuspension auswirkten (z.B. [80], [90]). Der Effekt von Straßenreinigungen auf die Resuspension ist derzeit umstritten, es gibt allerdings Hinweise darauf, dass durch Absaugen kurzfristig keine positive Wirkung erzielt wird [88].

3.1.3 Methoden zur Quantifizierung / ermittelte Emissionsfaktoren

Zur Quantifizierung der Emissionsfaktoren für Abrieb bzw. Resuspension werden verschiedene Ansätze angewendet. Grundsätzlich lassen sich diese in Modellrechnungen und Messungen unterteilen. Ein in den USA angewendetes Modell ist der empirische Ansatz der US-Umweltbehörde EPA (US EPA/AP 42 [77]), welcher allerdings wichtige physikalische Zusammenhänge nicht berücksichtigt (z.B. keine Einbeziehung der Fahrzeuggeschwindigkeit). Venkatram [91] und Kuhns et al. [92] kritisieren dies, und kommen zu dem Schluss, dass mittels dieses Modells keine verlässliche Aussage zu den tatsächlichen Emissionen möglich ist. In Deutschland wurde oft ein modifiziertes US EPA

Modell genutzt ([93]), welches durch Berücksichtigung der jeweiligen Verkehrssituation weiter angepasst wurde ([94]). Nordeuropäische Länder, in denen Spike-Reifen eingesetzt werden, setzen andere Modelle ein. Kukkonen et al. [95] entwickelte ein empirisches Modell für Helsinki, welches auf der linearen Regression zwischen NO_x - und PM_{10} -Konzentrationen basiert. Um auch tägliche Variationen der durch Resuspension und Abrieb verursachten PM_{10} bzw. $\text{PM}_{2,5}$ Belastung in Schweden auflösen zu können, entwickelten Omstedt et al. [96] ein Modell unter Einbeziehung von Staubbeladung und Feuchtigkeit der Straßen. Alle genannten Modelle sind mit relativ großen Unsicherheiten behaftet, und müssen gegen Messwerte abgeglichen werden. Als Messmethoden zur Bestimmung der erforderlichen Emissionsfaktoren werden entweder Prüfstandsversuche (z.B. [79], [80]), Luv/Lee-Messungen (z.B. [81]) oder Straßenfahrt-Messungen (z.B. [89], [92]) angewendet. Eine weitere Möglichkeit zur Abschätzung der aus Abriebprozessen hervorgehenden massebezogenen PM-Emissionsfaktoren stellt die Ermittlung des laufleistungsabhängigen Masseverlustes von z.B. Reifen oder Bremsbelägen dar.

Aufgrund der vielfältigen Einflussfaktoren und den damit verbundenen großen zeitlichen sowie räumlichen Variabilitäten, sowie der Komplexität der messtechnischen bzw. rechnerischen Quantifizierung ist eine genaue Angabe der Emissionsfaktoren für Resuspension bzw. Abrieb kaum möglich. Daher sind die im Folgenden aus verschiedenen Literaturquellen zusammengefassten Daten lediglich als typische Werte bzw. Bereiche zu verstehen, von denen in speziellen Fällen auch deutliche Abweichungen auftreten können.

Tabelle 3-1: *Emissionsfaktoren in mg/km für Reifenabrieb, mittlere Literaturwerte mit Angabe des Schwankungsbereichs in Klammern falls bekannt [96], [97], [98], [86].*

Größenklasse	Pkw	Lkw
Gesamtstaub	≈ 100 (53...163)	≈ 200 (78...1400)
PM ₁₀	≈ 10 (0...13)	≈ 40 (0...200)
PM _{2,5}	≈ 0,3	≈ 2

Tabelle 3-2: *Emissionsfaktoren in mg/km für Fahrbahnabrieb [99].*

Größenklasse	Pkw	Lkw
Gesamtstaub	15	76
PM ₁₀	8	38
PM _{2,5}	4	21

Tabelle 3-3: *Emissionsfaktoren in mg/km für Bremsenabrieb, mittlere Literaturwerte mit Angabe des Schwankungsbereichs in Klammern [86], [96], [97] [100], [101], [102], [103].*

Größenklasse	Pkw	Lkw
Gesamtstaub	≈ 12 (3...20)	≈ 40 (8...100)
PM ₁₀	≈ 8 (1...10)	≈ 30 (4...50)
PM _{2,5}	≈ 2 (1...2)	≈ 7 (3...8)

Tabelle 3-4: *Emissionsfaktoren in mg/km für die gesamte Grobstaubemission inkl. Resuspension, mittlere Literaturwerte mit Angabe des Schwankungsbereichs in Klammern [80], [96], [97], [104], [105].*

Größenklasse	Pkw	Lkw
Gesamtstaub	≈ 200 (70...1000)	≈ 500 (150...3000)
PM ₁₀	≈ 40 (25...100)	≈ 200 (50...300)
PM _{2,5}	≈ 10 (6...20)	≈ 50 (30...100)

Emissionsfaktoren für die Resuspension von unbefestigten Straßen weisen in der Regel ca. um Faktor 10 – 100 höhere Werte als die für befestigte Straßen auf (siehe Tabelle 3-4). Somit ergeben sich Emissionsfaktoren im Bereich von etwa 10-300 g/km (TSP) ([87], [88]), wobei die tatsächliche Emission stark von Einflüssen wie Feuchtigkeit, Bodenbeschaffenheit oder Fahrgeschwindigkeit abhängt.

3.2 Eigene Messungen

Im Folgenden werden die Ergebnisse der eigenen Messungen zur Resuspension bzw. zum Bremsenabrieb zusammengefasst. Ziel der Messkampagne war einerseits eine grundlegende, qualitative Untersuchung der emittierten Partikel bezüglich deren Anzahl-Größenverteilungen sowie des Einflusses von Probenahmestelle, Fahrgeschwindigkeit und Straßentyp. Andererseits konnten durch die durchgeführten Messungen erste Erfahrungen zur messtechnischen Untersuchung von Resuspension und Bremsenabrieb gesammelt werden.

3.2.1 Messaufbau

Alle Messungen erfolgten mit einem Pkw-Kombi (Baujahr 2002) während mehrerer Fahrten auf öffentlichen Straßen (Landstraße und Autobahn). Zur Untersuchung der aufgewirbelten bzw. beim Bremsen emittierten Partikel kam ein Aerodynamic Particle Sizer (APS3320, TSI Inc., [106]) zum Einsatz, womit Partikel-Größenverteilungen im Bereich $0.5 \mu\text{m} < D_{ae} < 20 \mu\text{m}$ mit einer Zeitauflösung von 5 s aufgenommen werden konnten. Aufgrund der zu erwartenden geringen Partikel-Anzahlkonzentrationen in Verbindung mit hohen potentiellen Probenahmeverlusten war die Auslegung des Probenahmesystems besonders kritisch. Da neben der nicht-isokinetischen Probenahme sowohl Trägheitsimpaktion als auch Sedimentation stark zu den Partikelverlusten im untersuchten Partikel-Größenbereich beitragen, ergab sich bei der Wahl eines geeigneten Probenahmefflusses ein Zielkonflikt. Zur Minimierung der Sedimentationsverluste durch Ablagerung der Partikel im Rohrleitungssystem aufgrund deren Schwerkraft, hätte die Aufenthaltszeit durch einen möglichst hohen Probenfluss verringert werden müssen. Dies hätte jedoch zu erhöhten Verlusten durch Trägheitsimpaktion bei Strömungsumlenkungen in Biegungen geführt. Als wirksamste Maßnahme zur Verringerung der Partikelverluste ergab sich somit die Minimierung von Probenleitungslänge und Anzahl der Biegungen. Um dies zu erreichen wurde das APS in der Ersatzradmulde mit nach unten gerichteten Probeneinlass positioniert. Die Probenahmeleitung konnte dann direkt durch das Bodenblech zu unterschiedlichen Positionen unter dem Heck des Fahrzeugs geführt werden. So entstanden relativ kurze Probenleitungslängen zwischen etwa 30 und 150 cm mit jeweils einem bzw. zwei 90° Bögen (je nach Messstelle). Bei einem Gesamtfluss von 5 L/min und einem 6 mm Probeneinlass ergab sich die Ansauggeschwindigkeit zu 11 km/h. Die durch diese sub-isokinetische

Probenahme (Anströmgeschwindigkeiten waren > 11 km/h) erreichte Aufkonzentrierung größerer Partikel wirkte den Partikelverlusten in der Probenahmeleitung entgegen, wodurch ein teilweiser Ausgleich erreicht wurde. Eventuelle Verzerrungen der gemessenen Größenverteilungen durch unterschiedlich starke Verluste in Abhängigkeit von der Partikelgröße sollten so möglichst gering gehalten werden. Eine genaue Quantifizierung der Einlass- sowie Durchgangseffizienzen wurde nicht durchgeführt, da nur relative Unterschiede in den Größenverteilungen in Abhängigkeit von Fahrgeschwindigkeit, Probenahmestelle und Straßentyp untersucht werden sollten. Alle Messfahrten wurden auf trockenen Straßen während vergleichbarer meteorologischer Bedingungen durchgeführt.

3.2.2 Ergebnisse

3.2.2.1 Vergleich unterschiedlicher Probenahmestellen

Da sich während der ersten Versuche insbesondere bei den größeren Partikeln sehr niedrige Anzahlkonzentrationen ergaben, wurde nach einer geeigneten Probenahmestelle unter dem Testfahrzeug gesucht. Ziel dabei war eine Probeneinlassposition bei möglichst hohen Partikel-Anzahlkonzentrationen, um eine gute Ausnutzung des APS Messbereiches und damit eine Erhöhung der Genauigkeit zu erzielen. Dazu wurden drei verschiedene Varianten bei gleichen Randbedingungen, insbesondere hinsichtlich der abgefahrenen Strecke und Fahrgeschwindigkeit, untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3-1 dargestellt, und repräsentieren jeweils die über ca. 5 km Landstraßenfahrt gemittelte Größenverteilung.

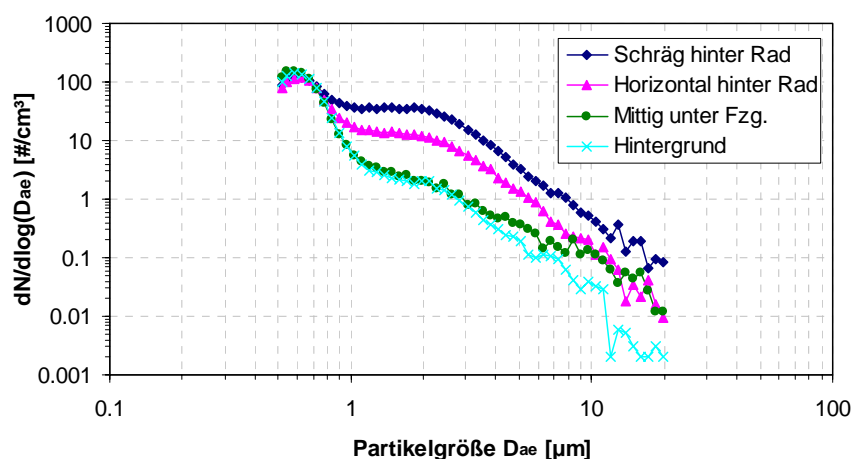


Abbildung 3-1: Partikel-Größenverteilungen von Resuspensionsmessungen an unterschiedlichen Probenahmestellen unter einem Pkw für eine mittlere Fahrgeschwindigkeit von 65 km/h (keine Hintergrundsubtraktion).

Zum Vergleich ist zusätzlich die bei stehendem Fahrzeug über ca. 1 Minute gemessene und gemittelte Hintergrundkonzentration, aufgenommen an drei verschiedenen Stellen der abgefahrenen Strecke, eingetragen. Folgende Probenahme-Varianten wurden miteinander verglichen:

- 1) Schräg hinter dem Rad: Probenahmesonde ca. 20 cm hinter rechtem Hinterrad, Einlass ca. 15 cm über der Straßenoberfläche, Einlass zeigt in Richtung Reifenaufstandsfläche.
- 2) Horizontal hinter dem Rad: Probenahmesonde ca. 20 cm hinter rechtem Hinterrad, Einlass ca. 15 cm über der Straßenoberfläche, Ausrichtung des Einlasses horizontal in Fahrtrichtung.
- 3) Zentriert unter dem Fahrzeug: Probenahmesonde ca. 15 cm über der Straßenoberfläche mittig unter dem Fahrzeug (unter Ersatzradmulde), Ausrichtung des Einlasses horizontal in Fahrtrichtung.

Wie aus Abbildung 3-1 entnommen werden kann, lieferte Variante 1 erwartungsgemäß die höchsten Partikelanzahlen, während mit Variante 3 Werte nahe am Hintergrund gemessen wurden. Aufgrund dieses Ergebnisses wurde für alle weiteren Messungen Variante 1 gewählt.

3.2.2.2 Einfluss der Fahrgeschwindigkeit

Die Untersuchung des Einflusses der Geschwindigkeit auf die Größenverteilungen der Resuspensionspartikel erfolgte auf einer wenig befahrenen, befestigten Ortsverbindungsstraße. Je Geschwindigkeit wurde diese Straße jeweils in beiden Richtungen abgefahren, wobei ausschließlich Messungen ohne Quereinflüsse durch andere Fahrzeuge betrachtet wurden. Die Hintergrund-Größenverteilung wurde an mehreren Stellen der Strecke über ca. 1 Minute aufgenommen und von den während der Fahrt ermittelten Partikelanzahlverteilungen subtrahiert. Die erhaltenen Daten sind in Abbildung 3-2 gezeigt.

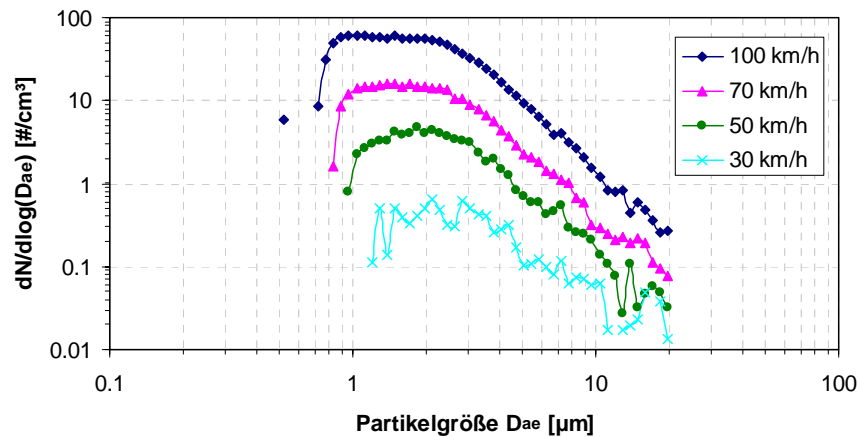


Abbildung 3-2: Größenverteilungen von Resuspensionspartikeln in Abhängigkeit von der Fahrgeschwindigkeit (Hintergrund subtrahiert).

Es zeigt sich, dass die Form der Resuspensions-Größenverteilungen nahezu unabhängig von der Fahrgeschwindigkeit war. Eine leichte Verschiebung des Größenverteilungs-Maximums in Richtung kleinerer Partikeldurchmesser kann jedoch mit steigender Geschwindigkeit beobachtet werden. Aufgrund der Komplexität der Probenahme und der damit verbundenen möglichen Fehlereinflüsse könnten allerdings auch geschwindigkeits- und partikelgrößenabhängige Messartefakte eine Rolle gespielt haben. Insgesamt deuten die gezeigten Daten auf eine weitgehend partikelgrößenunabhängige Wirksamkeit der zugrundeliegenden Resuspensions-Mechanismen im betrachteten Größenbereich hin. Als Maximum der gemessenen Größenverteilungen ergaben sich ca. 2 μm, was nahe an dem von Pinnick et al. [78] gefundenen Wert von 2.5 μm liegt.

Um den Einfluss der Fahrgeschwindigkeit auf die PM-Anzahlemission zu untersuchen wurden die in Abbildung 3-2 dargestellten Daten jeweils in gesamt-Partikelanzahlkonzentrationen umgerechnet, und die erhaltenen Werte in Abbildung 3-3 über der entsprechenden Fahrzeuggeschwindigkeit aufgetragen.

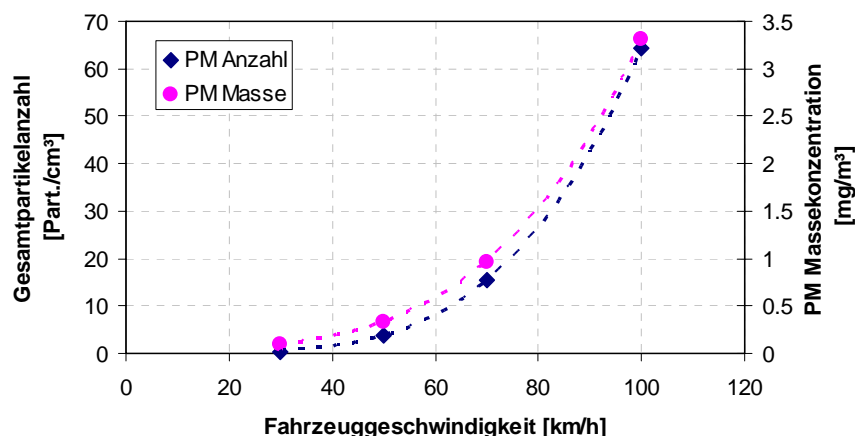


Abbildung 3-3: Gesamtanzahl- und Massekonzentration von Resuspensionspartikeln hinter dem Reifen in Abhängigkeit von der Fahrgeschwindigkeit (Hintergrund subtrahiert).

Daraus geht deutlich hervor, dass zwischen emittierter PM-Anzahl bzw. -Masse und der Fahrgeschwindigkeit ein nicht-linearer Zusammenhang besteht. Hussein et al. [107] beobachteten ebenfalls ein nicht-lineares Verhalten bei Verwendung von Spike-Reifen. Eine mögliche Erklärung hierfür könnte der Einfluss der kinetischen Energie des Fahrzeuges spielen, welche mit dem Quadrat der Geschwindigkeit zunimmt, und letztendlich die Basis der Resuspensionsprozesse bildet. Eine weitere Beobachtung ist das Vorhandensein einer kritischen Geschwindigkeit, welche hier bei ca. 20 km/h liegt, und erst ab deren Überschreitung signifikante Emissionen durch Resuspension zu erwarten sind. Diese Erkenntnis wird durch die Ergebnisse von Sehmel [108] bestätigt, welcher ebenfalls eine Grenzgeschwindigkeit feststellte, unterhalb welcher keine merkliche Resuspension zu beobachten war. Die sehr hohen PM Massekonzentrationen, welche unter Annahme sphärischer Partikel mit einer Dichte von 2.8 g/cm³ (Mineralstaub) abgeschätzt wurden, sind auf die Positionierung des Probeneinlasses direkt hinter dem Reifen zurückzuführen.

3.2.2.3 Fahrbahneinfluss

Wie aus der Literatur bekannt, wird die Höhe der durch Resuspension erzeugten PM-Emissionen bedeutend vom Zustand der Fahrbahnoberfläche beeinflusst. Eine entscheidende Rolle spielt dabei die Staubbiladung der Straße, welche direkten Einfluss auf das Emissionspotential nimmt. Daraus folgt, dass insbesondere bei unterschiedlichen

Straßentypen ein abweichendes Emissionsverhalten zu erwarten ist. Zur Untersuchung dieses Fahrbahneinflusses wurden die unter 3.2.2.2 beschriebenen Landstraßenmessungen mit zusätzlich durchgeführten Autobahnmessungen verglichen. Dazu wurden die jeweils über etwa. 2 Minuten gemessenen und gemittelten sowie hintergrundkorrigierten Größenverteilungen für die Geschwindigkeiten 70 und 100 km/h gegenübergestellt. Das Ergebnis ist in Abbildung 3-4 dargestellt.

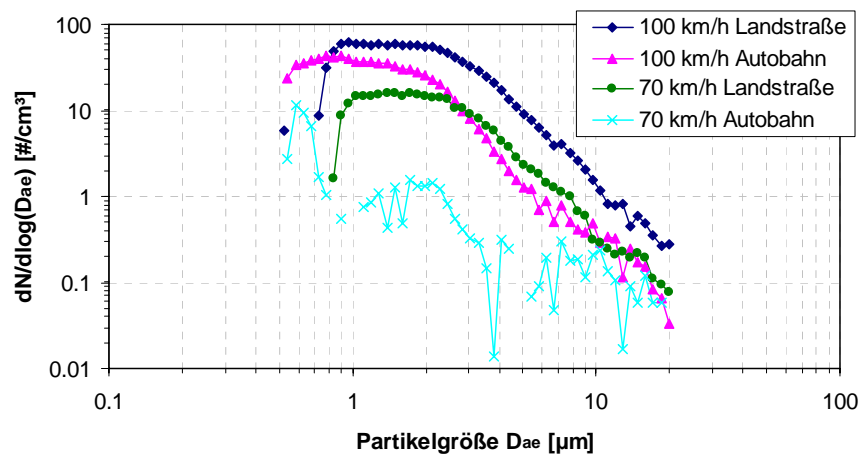


Abbildung 3-4: Vergleich der Größenverteilungen von Resuspensionspartikeln auf Autobahn und Landstraße (Hintergrund subtrahiert).

Für Fahrgeschwindigkeiten von sowohl 70 km/h als auch 100 km/h sind die auf der Landstraße durch Resuspension emittierten Partikelanzahlen gegenüber den entsprechenden Autobahn-Werten deutlich erhöht. Bei 70 km/h können auf der Autobahn kaum noch Partikelaufwirbelungen gemessen werden. Im Gegensatz dazu wurde an der Autobahn eine deutlich höhere Hintergrundkonzentration als an der Landstraße festgestellt. Eine mögliche Erklärung für diese Beobachtungen wäre, dass auf der Autobahn aufgrund des größeren und schnelleren Verkehrsflusses weniger partikelförmiges Material abgelagert wird. Somit weist die Autobahn bezüglich PM-Ablagerungen eine vergleichsweise saubere Oberfläche auf, womit die Vermutung von Kuhns et al. [88] und Etyemezian et al. [89] bestätigt wird, wonach Straßen mit höherem Verkehrsaufkommen und / oder höheren mittleren Fahrgeschwindigkeiten wahrscheinlich ein geringeres Emissionspotential aufweisen als wenig befahrene Straßen mit geringeren mittleren Fahrgeschwindigkeiten. Betrachtet man allerdings

die absoluten Anzahlkonzentrationen in der Umgebungsluft (Hintergrund), so ergeben sich umgekehrte Verhältnisse mit deutlich höheren Werten entlang der Autobahn. Dieser Unterschied könnte die Differenz in den Staubbelastungen von Autobahn und Landstraße erklären. Dabei könnte es, wie auch in Kuhns et al. [88] vermutet, ein Gleichgewicht zwischen PM-Deposition und PM-Resuspension geben. Mit steigendem Verkehrsaufkommen bzw. einer Zunahme der mittleren Fahrgeschwindigkeit würde dieses Gleichgewicht in Richtung geringerer Resuspension bzw. Deposition verschoben werden, da der Anteil der in der Luft gehaltenen Partikel zunimmt. Somit gäbe es eine ausgeglichene Bilanz des auf der Fahrbahnoberfläche abgelagerten PM und der in die Umgebungsluft durch Resuspension eingebrachten Partikel (bei vernachlässigbarem Einfluss von zusätzlichen Transportprozessen durch z.B. Wind).

3.2.2.4 Bremsenabrieb

Während der Messkampagne zur Resuspension wurde ebenfalls eine Partikel-Messung während einer Bremsung von 100 km/h bis zum Stillstand bei typischer Verzögerung durchgeführt. Um die erhaltenen Daten mit den Ergebnissen der Resuspensionsmessungen vergleichen zu können, wurde als mittlerer Hintergrund die während der Resuspensionsmessungen bei 50 km/h aufgenommenen Partikel-Größenverteilungen subtrahiert. Dadurch sollte die Größenverteilung der ausschließlich durch Bremsenabrieb erzeugten Partikel abgeleitet werden. Das Ergebnis dieses Versuchs ist in Abbildung 3-5 gezeigt.

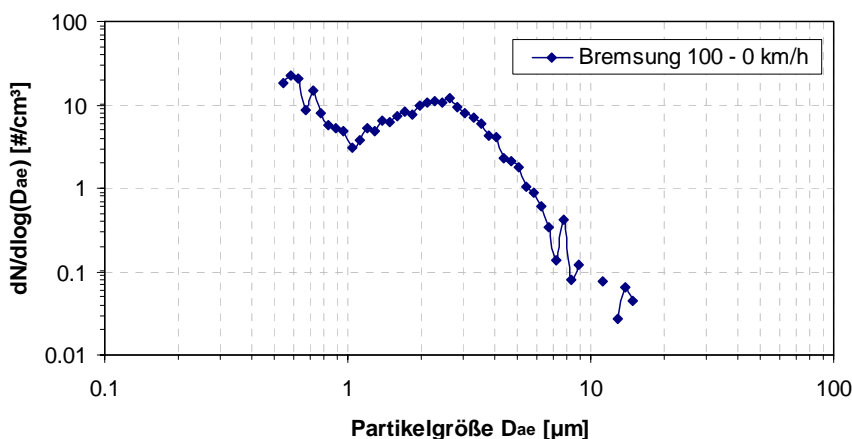


Abbildung 3-5: *Größenverteilung für Bremsenabriebpartikel bei einer Bremsung aus 100 km/h (Hintergrund und Resuspension subtrahiert).*

Im Unterschied zu den durch Resuspension erzeugten Partikel-Größenverteilungen entstand bei der Bremsung eine bi-modale Verteilung mit einem Anzahlmaximum im Partikel-Durchmesserbereich kleiner 1 μm sowie bei 2.5 μm . Ein ähnliches Verhalten wurde auch von Sanders et al. [79] und Garg et al. [103] beobachtet. Als Ursache der zusätzlichen Mode im Sub-Mikrometerbereich kann die teilweise Verbrennung organischen Bremsbelagmaterials durch die auftretenden hohen Temperaturen angenommen werden.

Um Bremsenabriebpartikel und Resuspensionspartikel auf mögliche Unterschiede hinsichtlich deren Struktur (Morphologie, chemische Zusammensetzung) zu untersuchen, wurde zusätzlich das Streulichtsignal des APS ausgewertet. Unterschiedliche Intensitäten der Streulichtsignale bei gleichen aerodynamischen Partikeldurchmessern würden dabei Hinweise auf strukturelle Abweichungen der entsprechenden Partikel liefern. Eine entsprechende statistische Auswertung (t-Test für CI = 95%) ergab allerdings keinen statistisch signifikanten Unterschied der verglichenen Streulichtintensitäten.

4 Diskussion und Einordnung der Messergebnisse

4.1 Zusammenfassung / Vergleich der Kfz-spezifischen Partikelquellen

Die durch Kraftfahrzeuge verursachten partikulären Emissionen setzen sich im Wesentlichen aus den verbrennungsbedingten Abgaspartikeln sowie den aus Resuspensions- und Abriebprozessen stammenden Partikeln zusammen. Insbesondere bei Dieselmotoren und direkteinspritzenden Ottomotoren können sich aufgrund der mit den angewendeten Brennverfahren einhergehenden Gemischinhomogenitäten hohe Anzahlen an Rußpartikeln bilden. Diese sogenannten Akkumulationspartikel weisen typischerweise Durchmesser im Bereich $30 \text{ nm} < D_p < 300 \text{ nm}$ auf. Zusätzlich können während der atmosphärischen Verdünnung des Abgases aus gasförmigen Komponenten durch Übersättigung Nukleationspartikel entstehen. Die so gebildeten volatilen Partikel sind bei Partikeldurchmessern um $D_p \approx 10 \text{ nm}$ zu finden. Im Gegensatz dazu werden bei Resuspension und Abrieb hauptsächlich Partikel im Größenbereich $> 1 \mu\text{m}$ emittiert.

Im Zuge der Einführung der DPF-Technologie bei modernen Diesel-Fahrzeugen konnte eine drastische Reduzierung der mit dem Abgas emittierten Partikel erreicht werden. Dies wird in Tabelle 4-1, welche die PM-Emissionen eines DPF-Pkw denen eines vergleichbaren Fahrzeugs ohne DPF gegenüberstellt, deutlich.

Tabelle 4-1: *Vergleich der anzahlbezogenen PM-Emissionsfaktoren von DPF-Fahrzeugen mit den entsprechenden Emissionsfaktoren von Fahrzeugen ohne DPF für verschiedene Motorbetriebszustände.*

	Partikel-Mode	NEDC 1E9 [s-1]	Konstantfahrt 100/120 km/h 1E9 [s-1]	Vollast- beschl. 1E9 [s-1]	Ausrollen (Schubetrieb) 1E9 [s-1]	DPF Regeneration 1E9 [s-1]
DPF Fahrzeug	Akkumulation ("Ruß-Mode")	4	39	200	1	58
	Nukleation	1	12	21	8	32000
Fahrzeug ohne DPF	Akkumulation ("Ruß-Mode")	1400	9700	14000	(6100)*	
	Nukleation	76	2900	1000	250	

* Wert aufgrund von Messartefakten wahrscheinlich überschätzt.

Dabei sind die jeweiligen zeitbezogenen Emissionsfaktoren für unterschiedliche Motorbetriebszustände getrennt nach Nukleations- und Akkumulationspartikeln für beide Fahrzeugkategorien zusammengefasst. Es zeigt sich, dass die Emissionen durch Einsatz eines DPF (geschlossenes SiC System) um ca. 2 Größenordnungen reduziert werden. Nur während der Regeneration des DPF (gemessen bei 100 km/h) werden größere Anzahlen an Nukleationspartikeln emittiert. Der Beitrag der durch die Regeneration freigesetzten Partikel ist allerdings in der Praxis weniger relevant, da Regenerationsereignisse nur einen geringen Anteil an der Betriebszeit eines Pkw haben. Insgesamt geht somit aus Tabelle 4-1 hervor, dass moderne, DPF ausgerüstete Fahrzeuge über den gesamten Bereich möglicher Motorbetriebszustände um etwa den Faktor 30 bis 350 weniger Abgaspartikel emittieren als Dieselfahrzeuge ohne DPF.

Abbildung 4-1 zeigt eine typische Anzahl-Größenverteilung der durch einen modernen DPF ausgerüsteten Diesel-Pkw verursachten PM₁₀-Emissionen.

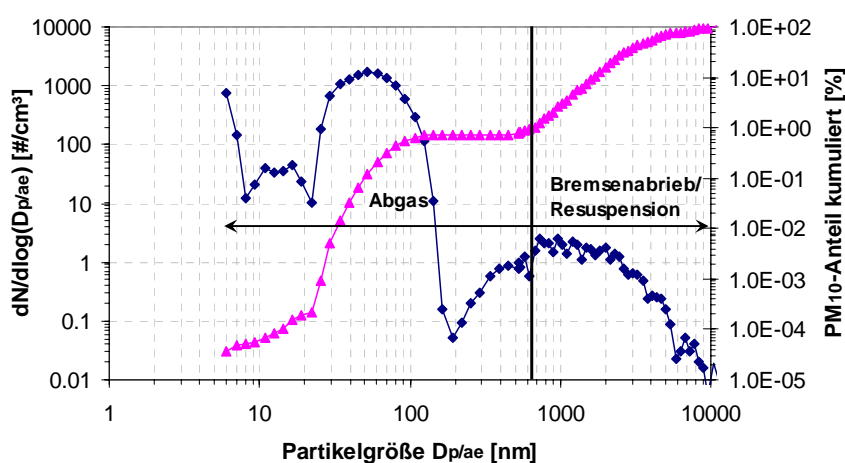


Abbildung 4-1: Partikel-Größenverteilung und kumulierte PM-Masseanteile im PM₁₀-Größenbereich für emittierte Abgas-, Resuspensions- und Bremsenabriebpartikel. Die Messung erfolgte ca. 10 m hinter einem modernen DPF Diesel-Pkw bei 100 km/h Teststreckenfahrt.

Dabei sind sowohl Abgaspartikel als auch durch Resuspension und Bremsenabrieb emittierte Partikel enthalten. Da die Messung dieser Größenverteilung in einem Abstand von 10 m

hinter dem Fahrzeug erfolgte, ergeben sich deutlich geringere Konzentrationen als die in den Abbildungen 3-1 bis 3-4 dargestellten Werte. Zusätzlich zur PM-Größenverteilung wurden die sich in den einzelnen Größenklassen ergebenden PM-Massen abgeschätzt, und deren jeweiligen PM₁₀-Anteile kumuliert Aufgetragen. Es ist anzumerken, dass messtechnisch bedingt die Größenklassierung im Größenbereich bis ca. 500 nm nach den Elektromobilitätsdurchmessern D_p erfolgte, wohingegen bei den größeren Partikeln der aerodynamische Durchmesser D_{ae} zugrunde gelegt wurde. Die sich daraus ergebende Unstetigkeit ist jedoch relativ klein, und hat keinen Einfluss auf die grundsätzliche Aussage der Darstellung. Sowohl bei PM-Anzahl als auch bezüglich der PM-Masse ist eine Dreiteilung zu erkennen. Entsprechend der Unterschiedlichen Entstehungsmechanismen bildet sich eine Nukleationsmode (um $D_p \approx 12$ nm), eine Akkumulationsmode (um $D_p \approx 55$ nm) sowie eine Mode der Resuspensions- bzw. Abriebpartikel (um $D_{ae} \approx 1500$ nm) aus. Obwohl die durch Nukleation entstandenen Partikel einen bedeutenden Anteil der Partikelanzahl darstellen können ist deren Beitrag zur PM-Masse vernachlässigbar klein ($\ll 1$ %). Aufgrund der hohen Filtrationseffizienz des DPF spielen auch die im Abgas verbleibenden Rußpartikel mit einem ca. 1 %igen Anteil an der insgesamt emittierten PM-Masse nur eine untergeordnete Rolle. Der mit ca. 99 % überwiegende Masseanteil wird durch die aus Resuspension und Abriebprozessen freigesetzten Partikel gebildet, obwohl diese keinen nennenswerten Anteil zur Gesamtpartikelanzahl liefern. Diese Gegenläufigkeit von Masse und Anzahl macht eine Bewertung der Gesundheitsrelevanz der einzelnen Partikelfraktionen derzeit sehr schwierig. Darüber hinaus nimmt auch die jeweilige Zusammensetzung der Partikel entscheidenden Einfluss auf deren Gefährdungspotential. Somit muss auch diesbezüglich eine Unterscheidung zwischen den volatilen, meist aus Schwefelsäure oder Kohlenwasserstoffen bestehenden Nukleationspartikeln, den festen Diesel-Rußpartikeln und den überwiegend mineralischen Resuspensionpartikeln vorgenommen werden.

Abbildung 4-2 veranschaulicht nochmals den zukünftigen Trend der PM₁₀-Emissionen für Diesel-Pkw. Die mit Einführung von EU-5 einhergehende drastische Verschärfung der Partikelgrenzwerte wird zur zunehmenden Verbreitung der DPF-Technologie führen. Dadurch wird, wie bereits dargestellt, der Anteil der motorisch bedingten Partikel deutlich abnehmen. Dies führt einerseits zu einer Reduzierung der insgesamt emittierten Partikelmasse. Andererseits wird dadurch der PM-Massebeitrag aus Resuspension und Abriebprozessen

zunehmend an Bedeutung gewinnen. Insbesondere im Hinblick auf die derzeitige PM_{10} Problematik könnte somit diese Partikelfraktion einen Ansatzpunkt für Minderungsmaßnahmen bilden.

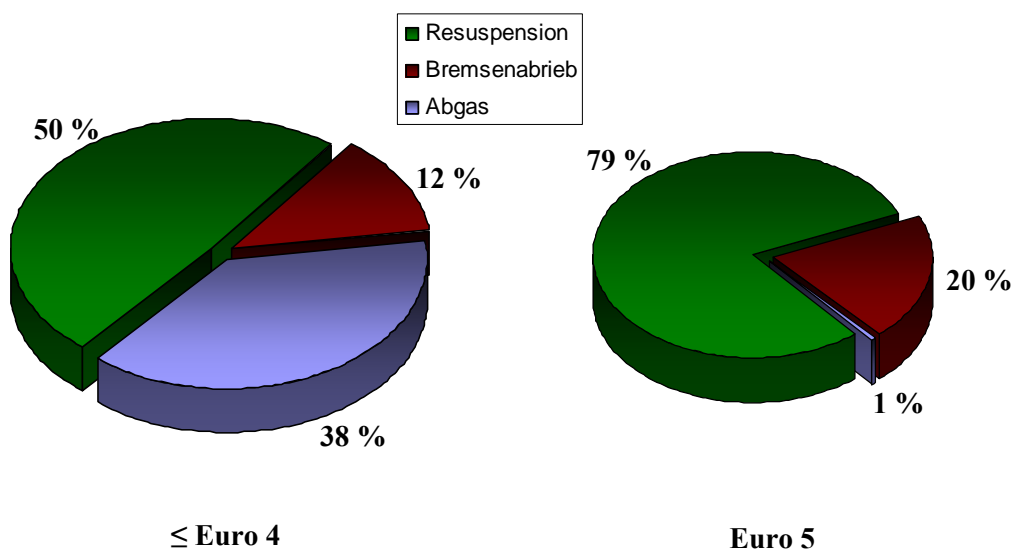


Abbildung 4-2: *Zusammensetzung der PM_{10} -Emissionen von Diesel-Pkw für aktuelle und zukünftige Abgasnorm. Die dargestellten Verhältnisse wurden aus eigenen Messungen von EU-4 Fahrzeugen sowohl mit DPF als auch ohne DPF unter Annahme jeweils gleicher Resuspension/Bremsenabrieb (s. Tabelle 3-3 und 3-4) abgeschätzt.*

5 Zusammenfassung / Ausblick

Emissionen von Kraftfahrzeugen haben einen wesentlichen Einfluss auf Prozesse in der Atmosphäre. Neben den gasförmigen Komponenten stehen insbesondere die vom Straßenverkehr stammenden Partikel im Mittelpunkt derzeitiger Diskussionen. Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag in einer über die Standardmethoden hinausgehenden Charakterisierung partikelförmiger Abgasemissionen moderner Diesel-Fahrzeuge. Zusätzlich erfolgten grundlegende Untersuchungen zur Resuspension, welche neben dem Abgas-aerosol die bedeutendste Quelle verkehrsbedingter Aerosolpartikel darstellt. Dabei wurden eigene Messungen durchgeführt und im Vergleich zu entsprechenden Literaturquellen ausgewertet.

Um eine zeit- und größen aufgelöste Partikelquantifizierung innerhalb der komplexen Abgassysteme moderner Diesel-Fahrzeuge zu ermöglichen, wurde eine angepasste Messmethodik angewendet. Diese basierte auf der Entwicklung eines Probenahmeverfahrens welches die kontrollierte Entnahme und Verdünnung eines Abgasteilstromes auch während der typischerweise auftretenden Druck- und Temperaturschwankungen erlaubt. Als Grundlage dafür dienten Ejektor-Verdüner, für welche ein einfaches semi-empirisches stationäres Strömungs-Modell abgeleitet wurde. Nach entsprechender Kalibrierung der verwendeten Verdüner kann damit der tatsächliche Verdünnungsfaktor unter Verwendung von Eingangsdruck und -temperatur berechnet werden. Die Genauigkeit bezüglich der Bestimmung des Verdünnungsfaktors wurde sowohl durch eine theoretische Fehleranalyse als auch in Versuchen ermittelt. Für Abgasbedingungen von 1 - 4 bar und 20 - 200°C ergab sich übereinstimmend ein max. Fehler von $\pm 8\%$ (95 % Konfidenz-Intervall). Zur zeitaufgelösten Analyse des durch diese Methode verdünnten Abgases wurden Echtzeit PM-Messgeräte (Größenspektrometer und Masse-Analysatoren) verwendet. Um die Vergleichbarkeit der damit ermittelten Größenverteilungen bzw. PM-Massen mit den Standardverfahren (SMPS, CPC und gravimetrische Filtermessung) sicherzustellen, wurden die Echtzeit Geräte mit den jeweiligen Standardgeräten verglichen. Dabei zeigten sich meist gute Korrelationen mit linearen Zusammenhängen. Die jeweiligen Absolutwerte für Gesamtpartikelanzahl, PM-Masse und CMD der Größenverteilungen zeigten mittlere Abweichungen um ca. 10 % (Ausnahme: DMS500 bzgl. PM-Anzahl). Zur Berechnung der PM-Masse aus den Größenverteilungen der Elektrometer-basierten Partikel-Spektrometer stellte sich die Nutzung

einer theoretischen effektiven Partikeldichte von $\rho_{eff}(D_p) \approx 1 \text{ g/cm}^3$ als geeignet heraus. Bei der Bestimmung der sehr niedrigen PM-Masse Emissionen von DPF-Fahrzeugen zeigten sich Einflüsse von Messartefakten, welche bei der gravimetrischen Standardmethode zu sehr hohen relativen Messfehlern (Überschätzung der tatsächlichen PM-Masse) führen können. Somit bietet die in dieser Arbeit abgeleitete und angewendete Messmethodik insbesondere bei modernen, niedrig emittierenden Fahrzeugen zusätzliche messtechnische Möglichkeiten bei der Quantifizierung partikelförmiger Emissionen.

Das entwickelte Probenahmeverfahren wurde in Verbindung mit den Ergebnissen der Messgeräteevaluierung beispielhaft zur in-situ Bestimmung der DPF Filtereffizienz eines aktuellen Diesel PKW im NEDC-Fahrzyklus genutzt. Dabei bestätigte sich, dass moderne geschlossene SiC-DPF Systeme PM-Emissionen sehr effektiv vermindern. Es zeigten sich über den gesamten relevanten Partikelgrößenbereich sehr hohe anzahlbezogene Filtereffizienzen von durchschnittlich 99.5 %. Die Effizienz bezüglich PM-Masse wurde zu durchschnittlich 99.3 % bestimmt. Die daraus resultierenden sehr niedrigen Partikelemissionen wurden auf einer Teststrecke unter realen Bedingungen untersucht, und die Ergebnisse mit Daten entsprechender Rollenprüfstandsversuche verglichen. Als Fahrzyklus fand ein spezieller Beschleunigungszyklus Anwendung, um einen weiten Bereich möglicher Motorbetriebszustände, einschließlich Vollastbeschleunigungen, abzudecken. Zusätzlich wurden die während der DPF Regeneration entstehenden PM-Emissionen analysiert. Über den gesamten Bereich der untersuchten Motorbetriebszustände (Schubbetrieb, Konstantfahrten und Vollast-Beschleunigungen) waren die sowohl im Labor als auch an der Atmosphäre ermittelten größen aufgelösten PM-Anzahlemissionen 2 – 3 Größenordnungen geringer als die entsprechenden Werte eines EU-3 Vergleichfahrzeuges ohne DPF (vgl. Tabelle 4-1). Während der DPF-Regeneration erhöhte sich die Anzahl der Nukleationspartikel um etwa 2 – 3 Größenordnungen, wohingegen die Rußpartikelanzahl kaum anstieg. Mittels spezieller in-situ Verdünnung konnte dieses Verhalten am Rollenprüfstand gut reproduziert werden. Eine genauere Untersuchung der gebildeten Nukleationspartikel mittels IC, GC und Volatilitätsanalyse führte zu dem Schluss, dass diese aus im DPF angesammelten Sulfaten (z.B. aus verbranntem Schmieröl) gebildet werden.

Die zur Resuspension und zum Bremsenabrieb durchgeführten Untersuchungen zeigten sich in guter Übereinstimmung mit den derzeit aus der Literatur verfügbaren Erkenntnissen. Es

zeigte sich, dass durch diese vorwiegend mechanischen Prozesse überwiegend Partikel im Größenbereich um 1 -3 μm aerodynamischen Partikeldurchmesser freigesetzt werden. Bei der Resuspension konnte ein exponentieller Zusammenhang zwischen der Anzahlkonzentration der emittierten Partikel und der Fahrgeschwindigkeit beobachtet werden. Als weitere wichtige Einflussgröße ergab sich die Staubbelastung der Straenoberflche, welche abhngig vom Straentyp (z.B. Autobahn/Landstrae) ist. Obwohl Resuspensions- bzw. Bremsenabriebpartikel verglichen zu den Rupartikeln DPF ausgersteter Diesel-Pkw um ca. 3 Grenordnungen geringere Anzahlen aufweisen, betrgt deren Masseanteil ca. 99 %.

Durch die zu erwartenden weiteren Verschrfungen der Abgasgrenzwerte werden auf dem Gebiet der Partikelmesstechnik zuknftig Verbesserungen notwendig sein, um insbesondere den steigenden Anforderungen an Genauigkeit, Nachweisgrenze und Vergleichbarkeit der Messungen untereinander gerecht zu werden. Um eine im Hinblick auf die Gesundheitsrelevanz auch in Zukunft sinnvolle Messmetrik bzw. Messmethode zu erarbeiten, werden zustzlich im Bereich der Aerosol Wirkungsforschung weiterfhrende Erkenntnisse ntig werden. Da die aus Resuspensions- und Abriebprozessen erzeugten Partikel zunehmend an Bedeutung gewinnen werden, ist auch auf diesem Gebiet zustzlicher Forschungsbedarf zu erwarten.

Literaturverzeichnis

1. Edwards, L.L.; Penner, J.E. in *Aerosols and Climate*; Hobbs, P.V.; McCormick, M.P. Eds.; Deepak, Hampton, VA, **1988**.
2. Hitzenberger, R. Absorption Coefficients and Mass Concentrations of the Urban Aerosol of Vienna, Austria during the Years 1985 and 1986. *Water Air Soil Pollut.* **1993**, 71, 131-153.
3. Heintzenberg, J.; Müller, K.; Birmilli, W.; Spindler, G.; Wiedensohler, A. Massrelated aerosol properties over the Leipzig Basin. *J. Geophys. Res.* **1998**, 103D, 13125-13135.
4. IPCC Bericht, WG1-AR4 **2007**.
5. Report on a WHO working group. Document EUR/03/5042688; Copenhagen: WHO Regional Office for Europe, **2003**.
6. Fraunhofer Institut, Toxikologie und Aerosolforschung, Pharmaforschung und klinische Inhalation –ITA-, Beurteilung von potentiellen Messverfahren zur Messung wirkungsrelevanter Partikelparameter. Abschlussbericht **2001**.
7. Usher, C.R.; Michel, A.E.; Grassian, V.H. Reactions on Mineral Dust. *Chem. Rev.* **2003**, 103, 4883-4939.
8. Vorlesungsskript Atmosphärische Aerosole, IfT Leipzig, **2004**.
9. Müller, J. PM-Quellenidentifizierung mittels Impaktormessungen. Bericht zum Workshop- PMx-Quellenidentifizierung: Ergebnisse als Grunlage für Maßnahmepläne, UBA Berlin, **2004**.
10. Lenz, H.P.; Prüller, S. Emissionen und Immissionen von Abgaskomponenten. VDI Fortschritt-Berichte, **2003**, Reihe 12 Nr. 528, Düsseldorf.
11. Prüller, S. Emissionen und Luftqualität – der Beitrag des Straßenverkehrs, Status und zukünftige Entwicklung der Emissionen. VDI Fortschritt-Berichte, **2002**, Reihe 12 Nr. 504, Düsseldorf.
12. Lahaye, J. Particulate Carbon from the Gas Phase. *Carbon* 30, **1992**, 309-314.
13. Kittelson, D.B.; Savstrom J.; Watts, W.F.; Johnson, J.P. Ultrafine and Nanoparticle Emissions from Engines. 15th Aerosol Society Annual Conference, Manchester, England, 14. – 15. April **2004**.
14. ACEA(2), Verband der europäischen Automobilhersteller, Programme on emissions on fine particles from passenger cars [2]. ACEA Report, **2002**.
15. Richtlinie des Rates vom 20. März **1970**, Zur Angleichung der Rechtsvorschriften der Mitgliedstaaten über Maßnahmen gegen die Verunreinigung der Luft durch Emissionen von Kraftfahrzeugen.
16. EU-Richtlinie 88/77/EWG.
17. Chase, R.E.; Duszkiwicz, G.J.; Richert, J.F.; Lewis, D.; Maricq, M.; Xu, N. PM measurement artifact: Organic vapor deposition on different filter media. *SAE* 2004-01-0967, **2004**.
18. Vogt, R.; Scheer, V.; Kirchner U. Measurement challenges of particle emissions at Euro-5 level. 4. Int. Exhaust Gas and particulate Emissions Forum, Ludwigsburg, 14./15.3.**2006**, ISBN 3-00-018207-1, 67-72.
19. Bergmann, M.; Scheer, V.; Vogt, R.; Benter, T. Comparison of the performance of real-time PM mass and number instrumentation for vehicle exhaust measurements. *SAE* 2007-24-0116, **2007**.
20. Matter Engineering AG Home Page, <http://www.matter-engineering.com/> (accessed November 02, **2008**).

21. Cambustion Home Page, www.cambustion.co.uk/instruments/dms500/index.html (accessed November 02, **2008**).
22. TSI Incorporated, Model 3090 Engine Exhaust Particle Sizer™ Spectrometer Operation and Service Manual. P/N 1980494, Revision E, August 2006, http://www.tsi.com/en-1033/products/2208/engine_exhaust_particle_sizer%E2%84%A2_spectrometer.aspx (accessed November 02, **2008**).
23. Dekati Home Page, <http://dekati.com/cms/dmm> (accessed November 02, **2008**).
24. AVL Internet Motorenmesstechnik und Testsysteme Home Page, www.avl.com/wo/webobsession.servlet.go/encoded/YXBwPWJjbXMmcGFnZT12aWV3Jm5vZGVpZD00MDAwMzkzNTI_3D.html (accessed November 02, **2008**).
25. Dekati Home Page, http://www.dekati.com/cms/fps_4000 (accessed November 02, **2008**).
26. Dekati Home Page, http://www.dekati.com/cms/dekati_diluter (accessed November 02, **2008**).
27. Wehner, B.; Philippin, S.; Wiedensohler, A. Design and calibration of a thermodenuder with an improved heating unit to measure the size-dependent volatile fraction of aerosol particles. *J. Aerosol Sci.* **2002**, 33, 1087 – 1093.
28. Kasper, M. The number concentration of non-volatile particles - Design study for an instrument according to the PMP recommendations. *SAE 04FL-33*, **2004**.
29. Symonds, J.P.R.; Reavell, K.S.J.; Olfert, J.S.; Campbell, P.W.; Swift, S.J. Diesel soot mass calculation in real-time with a differential mobility spectrometer. *J. Aerosol Sci.* **2007**, 38, 52-68.
30. ACEA, Verband der europäischen Automobilhersteller, Programme on emissions on fine particles from passenger cars. ACEA Report, Brussels, Belgium, **1999**.
31. Gruber, M.; Lenz, H.P.; Reischl, G.P.; Wopelka, T. Particulate Size Distribution Under Transient Driving Cycle Conditions. 22. Internationales Wiener Motorensymposium, 26.-27. April **2001**.
32. Giechaskiel, B.; Ntziachristos, L.; Samaras, Z.; Casati, R.; Scheer, V.; Vogt, R. Effect of Speed and Speed Transition on the Formation of Nucleation Mode Particles from a Light Duty Diesel Vehicle. *SAE 2007-01-1110*, **2007**.
33. Chase, R.E.; Duszakiewicz G.J.; Richert, J.F.; Lewis, D.; Maricq, M.; Xu, N. PM measurement artifact: Organic vapor deposition on different filter media. *SAE 2004-01-0967*, **2004**.
34. Proposal for a Regulation of the European Parliament and of the council on type approval of motor vehicles with respect to emissions and on access to vehicle repair information, amending Directive 72/306/EEC and Directive/EC, SEC(2005) 1745, http://ec.europa.eu/enterprise/automotive/pagesbackground/pollutant_emission/sec_2005_1745.pdf (accessed November 02, **2008**).
35. Maricq, M.; Xu, N. The effective density and fractal dimension of soot particles from premixed flames and motor vehicle exhaust. *J. Aerosol Sci.* **2004**, 35, 1251 – 1274.
36. Park, K.; Cao, F.; Kittelson, D.; McMurry, P. Relationship between Particle Mass and Mobility for Diesel Exhaust Particles. *Environ. Sci. Technol.* **2003**, 37, 577-583.
37. Kittelson, D.; Hands, T.; Nickolaus, C.; Collings, N.; Niemelä, V.; Twigg, M. Mass correlation of engine emissions with spectral instruments. *SAE 20045462*, **2004**.
38. Bergmann, M.; Vogt, R.; Szente, J.; Maricq, M.; Benter, T. Using ejector diluters to sample vehicle exhaust at elevated pressures and temperatures. *SAE 2008-01-2434*, **2008**.

39. AVL Internet Motorenmesstechnik und Testsysteme Home Page, http://www.avl.com/wo/webobsession.servlet.go/encoded/YXBwPWJjbXMmcGFnZT12aWV3Jm1hc2s9dmlldyZub2RldGl0bGVpZD00MTY3Mg_3D_3D.html (accessed November 02, **2008**).
40. Liu, Z.G.; Thurow, E.M.; Caldow, R.; Johnson, T.R. Transient Performance of Diesel Particulate Filters as Measured by an Engine Exhaust Particle Size Spectrometer. *SAE* 2005-01-0185, **2005**.
41. Wong, C.P.; Chan, T.L.; Leung, C.W. Characterization of diesel exhaust particle number and size distributions using mini-dilution tunnel and ejector diluter measurement techniques. *Atmos. Environ.* **2003**, 37, 4435–46.
42. Koch, W.; Lödding, H.; Mölter, W.; Munzinger, F. Verdünnungssystem für die Messung hochkonzentrierter Aerosole mit optischen Partikelzählern. *Staub—Reinhaltung der Luft*, **1988**, 48, 341.
43. Giechaskiel, B.; Ntziachristos, L.; Samaras, Z. Calibration and modelling of ejector dilutors for automotive exhaust sampling. *Meas. Sci. Technol.* **2004**, 15, 1–8.
44. Lyyränen, J.; Jokiniemi, J.; Kauppinen, E.I.; Backman, U.; Vesala, H. Comparison of Different Dilution Methods for Measuring Diesel Particle Emissions. *Aerosol Sci. Technol.* **2004**, 38, 12–23.
45. Shi, J.P.; Harrison, R.M.; Brear, F. Particle size distribution from a modern heavy duty diesel engine. *Sci. Total Environ.* **1999**, 235, 305–317.
46. DIN EN ISO 5167, Measurement of fluid flow by means of pressure differential devices inserted in circular cross-section conduits running full.
47. Benson, J.M.; Hawk, C.E. Testing small orifices. http://www.birdprecision.com/PDFs/small_orifices.pdf (accessed November 02, **2008**).
48. Vogt, R.; Scheer, V.; Kirchner, U.; Bergmann, M. Properties of Exhaust Particles from Modern Powertrain Technologies. 28. Internationales Wiener Motorensymposium, VDI Fortschrittsberichte, **2007**, Reihe 12, Nr. 639, Editor H. P. Lenz, ISBN 978-3-18-363912-0.
49. Kamimoto, T.; Shimono, M.; Takahashi, A.; Minagawa, T. Evaluation of Transient Performance of Diesel Particulate Filters via Light Extinction and Scattering Methods. *SAE* 2007-24-0117, **2007**.
50. Giechaskiel, B.; Munoz-Bueno, R.; Rubino, L.; Manfredi, U.; Dilara, P.; De Santi, G.; Andersson, J. Particle Measurement Program (PMP): Particle Size and Number Emissions Before, During and After Regeneration Events of a Euro 4 DPF Equipped Light-Duty Diesel Vehicle. *SAE* 2007-01-1944, **2007**.
51. Giechaskiel, B.; Ntziachristos, L.; Samaras, Z.; Scheer, V.; Casati, R.; Vogt, R. Formation potential of vehicle exhaust nucleation mode particles on-road and in the laboratory. *Atmos. Environ.* **2005**, 39, 3191–3198.
52. Rönkkö, T.; Virtanen, A.; Kannosto, J.; Keskinen, J.; Lappi, M.; Pirjola, L. Nucleation Mode Particles with a Nonvolatile Core in the Exhaust of a Heavy Duty Diesel Vehicle. *Environ. Sci. Technol.* **2007**, 41, 6384–6389.
53. Kittelson, D.B.; Watts, W.F.; Johnson, J.P. On-road and laboratory evaluation of combustion aerosols – Part1: Summary of diesel engine results. *J. Aerosol Sci.* **2006**, 37, 913–930.
54. Casati, R.; Scheer, V.; Vogt, R.; Benter, T. Measurement of nucleation and soot mode particle emission from a diesel passenger car in real world and laboratory in situ dilution. *Atmos. Environ.* **2007**, 41, 2125–2135.

-
55. Vogt, R.; Scheer, V.; Casati, R.; Benter T. On-Road Measurement of Particle Emission in the Exhaust Plume of a Diesel Passenger Car. *Environ. Sci. Technol.* **2003**, 37, 4070-4076.
 56. Rubino, L.; Phillips, P.R.; Twigg, M.V. Measurements of ultrafine particle number emissions from a light-duty diesel engine using SMPS, DMS, ELPI and EEPS. ICE2005, *SAE/NA 2005-24-015*, **2005**.
 57. Andersson, J.; Preston, W.; Brett, P.; Warrens, C. Lubricant composition impact on the emissions from a European heavy-duty diesel engine equipped with a diesel particulate filter. *SAE 2004-01-3012*, **2004**.
 58. Gruber, M. Charakterisierung partikelförmiger Emissionen beim Dieselmotor und Untersuchung der Verminderungsmaßnahmen. TU Wien, VDI Fortschritt-Berichte, **2002**, Reihe 12, Nr. 507, Wien.
 59. Maricq, M. On the electrical charge of motor vehicle exhaust particles. *J. Aerosol Sci.* **2006**, 37, 858-874.
 60. Hinds, W.C. Aerosol technology: Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles. ISBN 0-471-08726-2, **1982**.
 61. Willeke, K.; Baron, P.A. Aerosol Measurement: Principles, Techniques and Applications. ISBN 0-442-00486-9, **1993**.
 62. Maricq, M.; Podsiadlik, D.H.; Chase, R.E. Examination of the Size-Resolved and Transient Nature of Motor Vehicle Particle Emissions. *Environ. Sci. Technol.* **1999**, 33, 1618 -1626.
 63. Vogt, R.; Kirchner, U.; Scheer, V.; Hinz, K.P.; Trimborn, A.; Spengler, B. Identification of diesel exhaust particles at an Autobahn, urban and rural location using single-particle mass spectrometry. *J. Aerosol Sci.* **2003**, 34, 319-337.
 64. Wahlin, P.; Palmgren, F.; Van Dingenen, R. Experimental studies of ultrafine particles in streets and the relationship to traffic. *Atmos. Environ.* **2001**, 35, 63-69.
 65. Schneider, J.; Hock, N.; Weimer, S.; Borrmann, S.; Kirchner, U.; Vogt, R.; Scheer, V. Nucleation Particles in Diesel Exhaust: Composition Inferred from In Situ Mass Spectrometric Analysis. *Environ. Sci. Technol.* **2005**, 39, 6153-6161.
 66. Campbell, B.; Peckham, M.; Symonds, J.; Parkinson, J.; Finch, A. Transient Gaseous and Particulate Emissions Measurements on a Diesel Passenger Car Including a DPF Regeneration Event. *SAE 2006-01-1079*, **2006**.
 67. Scheer, V.; Kirchner, U.; Casati, R.; Vogt, R.; Wehner, B.; Philippin, S.; Wiedensohler, A.; Hock, N.; Schneider, J.; Weimer, S.; Borrmann, S. Composition of semi-volatile particles from diesel exhaust. *SAE 2005-05FL-203*, **2005**.
 68. Schneider, J.; Kirchner, U.; Borrmann, S.; Vogt, R.; Scheer, V. In situ measurements of particle number concentration, chemically resolved size distributions and black carbon content of traffic-related emissions on German motorways, rural roads and in city traffic. *Atmos. Environ.* **2008**, 42, 4257-4268.
 69. Du, H.; Yu, F. Nanoparticle formation in the exhaust of vehicles running on ultra-low sulfur fuel. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, 8, 4729-4739.
 70. Uhrner, U.; von Löwis, S.; Vehkamäki, H.; Wehner, B.; Bräsel, S.; Hermann, M.; Stratmann, F.; Kulmala, M.; Wiedensohler, A. Dilution and aerosol dynamics within a diesel car exhaust plume – CFD simulations of on-road measurement conditions. *Atmos. Environ.* **2007**, 41, 7440-7461.
 71. Zhao, P.; Feng, Y.; Zhu, T.; Wu, J. Characterization of resuspended dust in six cities of North China. *Atmos. Environ.* **2006**, 40, 5807-5814.
-

-
72. Johansson, C.; Norman, M.; Gidhagen, L. Spatial and temporal variations of PM₁₀ and particle number concentrations in urban air. *Environ. Monit. Assess.* **2007**, 127, 477-487.
 73. Norman, M.; Johansson, C. Studies of some measures to reduce road dust emissions from paved roads in Scandinavia. *Atmos. Environ.* **2006**, 40, 6154-6164.
 74. C.A.R.B., Emissions inventory (1996), Prepared by the Technical Support Division of the Emissions Inventory Branch of the California Air Resources Board, Sacramento, CA, **1998**.
 75. DRI, Fugitive dust and other source contributions to PM₁₀ in Nevada's Las Vegas Valley. Vol. II, Final Report for Clark County Department of Comprehensive Planning, Desert Research Institute, Reno, NV, **1996**.
 76. SAIC, Development of base and future year emission inventories for area sources, nonroad mobile sources, and onroad motor vehicles for the Northern Ada County PM₁₀ Nonattainment Area. Final Report prepared for Idaho Department of Environmental Quality, **1997**.
 77. US EPA, Emission factor documentation for AP-42, Section 13.2.1: Paved Roads. Report prepared for US EPA, Midwest Research Institute, Kansas City, **1993**.
 78. Pinnick, R.G.; Fernandez, G.; Hinds, B.; Bruce, C.; Schaefer, R.; Pendleton, J. Dust generated by vehicular traffic on unpaved roadways: sizes and infrared extinction characteristics. *Aerosol Sci. Technol.* **1985**, 4, 99-121.
 79. Sanders, P.G.; Xu, N.; Dalka, T.M.; Maricq, M. Airborne Brake Wear Debris: Size Distributions, Composition, and a Comparison of Dynamometer and Vehicle Tests. *Environ. Sci. Technol.* **2003**, 37, 4060-4069.
 80. Kupiainen, H.J.; Tervahattu, H.; Räisänen, M.; Mäkelä, T.; Aurela, M.; Hillamo, R. Size and Composition of Airborne Particles from Pavement Wear, Tires, and Traction Sanding. *Environ. Sci. Technol.* **2005**, 39, 699-706.
 81. Moosmüller, H.; Gillies, J.A.; Rogers, C.F.; DuBois, D.W.; Chow, C.J.; Watson, J.G.; Langston, R. Particulate Emission Rates for Unpaved Shoulders along a Paved Road. *J. Air Waste Manage. Assoc.* **1998**, 48, 398-407.
 82. Hjortenkrans, D.; Bergbäck, B.; Häggerud, A. Metal Emissions from Brake Linings and Tires: Case Studies of Stockholm, Sweden 1995/1998 and 2005. *Environ. Sci. Technol.* **2007**, 41, 5224-5230.
 83. Rauterberg-Wulff, A. Beitrag des Reifen- und Bremsenabriebs zur Rußimmission an Straßen. VDI Fortschritt Berichte, **1998**, Reihe 15, Nr. 202.
 84. Venkatram, A.; Fitz, D.; Bumiller, K.; Du, S.; Boeck, M.; Ganguly, C. Using a dispersion model to estimate emission rates of particulate matter from paved roads. *Atmos. Environ.* **1999**, 33, 1093-1102.
 85. Mollinger, A.M.; Nieuwstadt, F.; Scarlett, B. Model experiments of the resuspension caused by road traffic. *Aerosol Sci. Technol.* **1993**, 19, 330-338.
 86. Abu-Allaban, M.; Gillies, J.A.; Gertler, A.W.; Clayton, R.; Proffitt, D. Tailpipe, resuspended road dust, and brake-wear emission factors from on-road vehicles. *Atmos. Environ.* **2003**, 37, 5283-5293.
 87. Etyemezian, V.; Kuhns, H.; Gillies, J.; Green, M.; Pitchford, M.; Watson, J. Vehicle-based road dust emission measurement: I – methods “and calibration. *Atmos. Environ.* **2003**, 37, 4559-4571.
 88. Kuhns, H.; Etyemezian, V.; Green, M.; Hendrickson, K.; McGown, M.; Barton, K.; Pitchford, M. Vehicle-based road dust emission measurement – Part II: Effect of precipitation, wintertime road sanding, and street sweepers on inferred PM₁₀ emission potentials from paved and unpaved roads. *Atmos. Environ.* **2003**, 37, 4573-4582.
-

-
89. Etyemezian, V.; Kuhns, H.; Gillies, J.; Chow, J.; Hendrickson, K.; McGown, M.; Pitchford, M. Vehicle-based road dust emission measurement (III): effect of speed, traffic volume, location, and season on PM₁₀ road dust emissions in the Treasure Valley, ID. *Atmos. Environ.* **2003**, 37, 4583-4593.
 90. Bringfelt, B.; Backström, H.; Kindell, S.; Omstedt, G.; Persson, C.; Ullerstig, A. Calculation of PM10 concentrations in Swedish cities. SMHI Report RMK No. 76, **1997**.
 91. Venkatram, A. A critique of empirical emission factor models: a case study of the AP-42 model for estimating PM₁₀ emissions from paved roads. *Atmos. Environ.* **2000**, 34, 1-11.
 92. Kuhns, H.; Etyemezian, V.; Landwehr, D.; MacDougall, C.; Pitchford, M.; Green, M. Testing Re-entrained Aerosol Kinetic Emissions from Roads (TRAKER): a new approach to infer silt loading on roadways. *Atmos. Environ.* **2001**, 35, 2815-2825.
 93. Düring, I.; Lohmeyer, A.; Lutz, M.; Reichenbacher, W. Estimation of the „non exhaust pipe“ PM₁₀ emissions of streets for practical traffic air pollution modeling. In: Proceedings of the 11th International Symposium Transport and Air Pollution in Graz, Vol. 1, VKM-THD, University of Technology, pp. 309-316, **2002**.
 94. Düring, I.; Brächlin, W.; Bössinger, R.; Müller, M.; Lohmeyer, A. Experiences when modeling Roadside PM₁₀ concentrations. Proceedings at the 9th International Conference on Harmonization within atmospheric dispersion modeling for regulatory purposes, Garmisch-Partenkirchen, Germany, **2004**.
 95. Kukkonen, J.; Härkönen, J.; Karppinen, A.; Pohjola, M.; Pietarila, H.; Koskentalo, T. A semi-empirical model for urban PM₁₀ concentrations, and its evaluation against data from an urban measurement network. *Atmos. Environ.* **2001**, 35, 4433-4442.
 96. Omstedt, G.; Bringfelt, B.; Johansson, C. A model for vehicle-induced non-tailpipe emissions of particles along Swedish roads. *Atmos. Environ.* **2005**, 39, 6088-6097.
 97. Bäumer, D. Transport und chemische Umwandlung von Luftschadstoffen im Nahbereich von Autobahnen – Numerische Simulationen. Wissenschaftlicher Bericht Nr. 32, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, **2003**.
 98. EPA, Compilation of air pollutant emission factors. Fourth edition Vol. II: Mobile sources, US Environmental Protection Agency, Ann Arbor, USA, **1985**.
 99. Lückewille, A.; Bertok, I.; Amann, M.; Cofala, J.; Györfas, F.; Heyes, C.; Karvosenoja, N.; Klimont, Z.; Schöpp, W. A Framework to Estimate the Potential and Costs for the Control of fine Particulate Emissions in Europe. Interim Report IR-01-023, International Institute for Applied System Analysis, Laxenburg, Österreich, **2001**.
 100. Westerlund, K.G.; Johansson, C. Emissions of metals and particulate matter due to wear of brake linings in Stockholm. In: Brebbia, C.A., Martin-Duque, J.F. (Eds.), *Air Pollution X*, **2002**.
 101. Cha, S.; Carter, P.; Bradow, R.L. *SAE Technical Paper*, No. 831036, **1983**.
 102. United States Environmental Protection Agency, EPA420-R-03-001, **2003**.
 103. Garg, B.D.; Cadle, S.H.; Mulawa, P.A.; Groblicki, P.J.; Laroo, C.; Parr, G.A. Brake wear particulate matter emissions. *Environ. Sci. Technol.* **2000**, 34, 4463-4469.
 104. Gehrig, R.; Hill, M.; Buchmann, B.; Imhof, D.; Weingartner, E.; Baltensperger, U. Verifikation von PM10-Emissionsfaktoren der Straßenverkehrs. Forschungsprojekt ASTRA 2000/415, EMPA/PSI, **2003**.
 105. Düring, I.; Lohmeyer, A. Validierung von PM₁₀-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen. Ingenieurbüro Lohmeyer, Dresden und Karlsruhe, Im Auftrag von: Senatsverwaltung und Stadtentwicklung, Berlin und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, **2001**.
-

106. TSI Home page, <http://www.tsiinc.de/Product.aspx?Pid=1776> (accessed November 02, **2008**).
107. Hussein, T.; Johansson, C.; Karlsson, H.; Hansson, H.C. Factors affecting non-tailpipe aerosol particle emissions from paved roads: On-road measurements in Stockholm, Sweden. *Atmos. Environ.* **2008**, 42, 688-702.
108. Sehmel, G.A. Particle resuspension from an asphalt road caused by car and truck traffic. *Atmos. Environ.* **1973**, 7, 291-309.

Anhang

Tabelle A-1: *Typische Inhaltsstoffe von Dieselpartikeln für allg. Dieselmotoren [83].*

Komponente	Herkunft	Anteil
Anorganische Fraktion		
EC	Unvollständige Verbrennung	20-90 % der Partikelmasse
Oxidasche	Aschegehalt des Kraftstoffes Schmieröladditive	1-2 % der Partikelmasse
Sulfat	S-Gehalt des Kraftstoffes	4 % der Partikelmasse*
Lösliche Organische Fraktion		
Paraffine C ₉ -C ₄₀	Unverbrannter Kraftstoff Unverbranntes Schmieröl	52-70 % der org. Fraktion
Polare neutrale Verbindungen (z.B. Aldehyde, Ketone)	Teiloxidierter Kraftstoff Teiloxidiertes Schmieröl	11 % der org. Fraktion
Saure Verbindungen (z.B. Phenole, Ketone, Carbonsäure)	Teiloxidierter Kraftstoff Teiloxidiertes Schmieröl	10 % der org. Fraktion
Aromaten, polyaromatische Kohlenwasserstoffe	Pyrolyseprozesse	7 % der org. Fraktion

* bei einem S-Gehalt des Kraftstoffs von 0,2 %



Abbildung A-1: *Foto des Messaufbaus am Rollenprüfstand.*

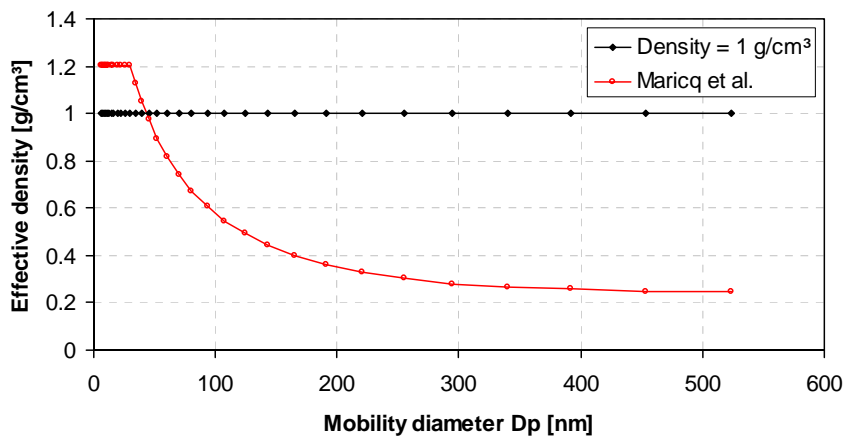


Abbildung A-2: Dichtefunktionen (effektive Dichte) zur Berechnung der PM-Masse aus den Spektraldaten von EEPS und DMS.

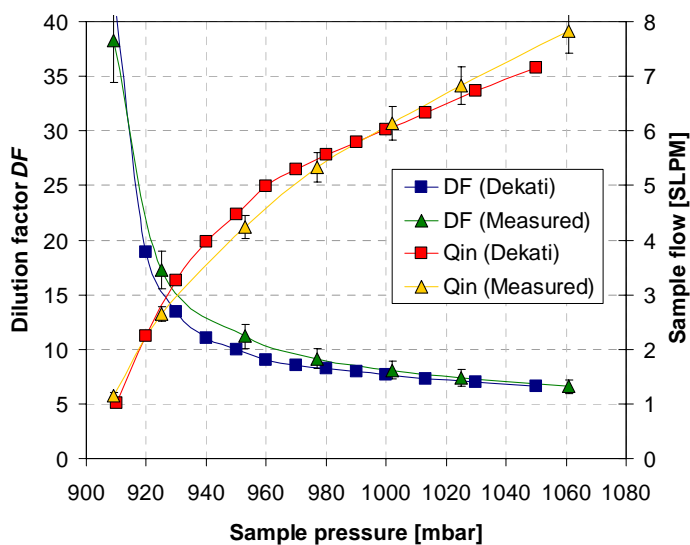


Abbildung A-3: Kalibration eines Ejektor-Verdünners nahe Standardbedingungen und Vergleich der Messdaten mit den entsprechenden Hersteller-Werten.

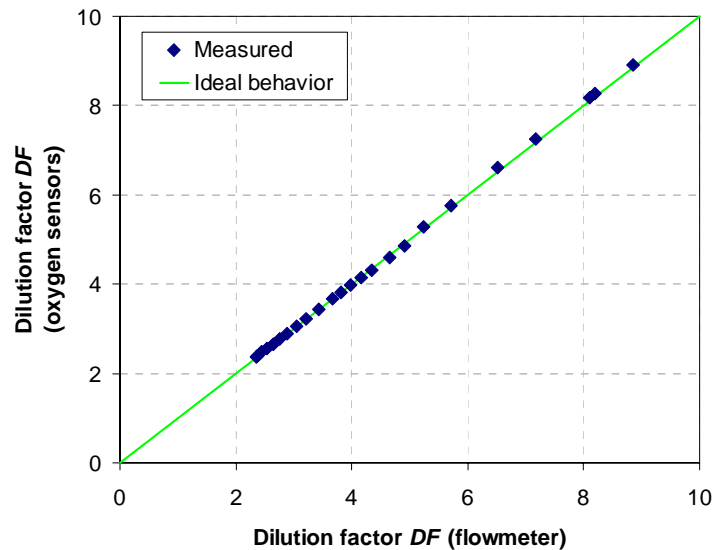


Abbildung A-4: Vergleich von Flussmessung und Tracergas-Methode zur Bestimmung des Verdünnungsfaktors bei der Kalibrierung von Ejektor-Verdünnern.

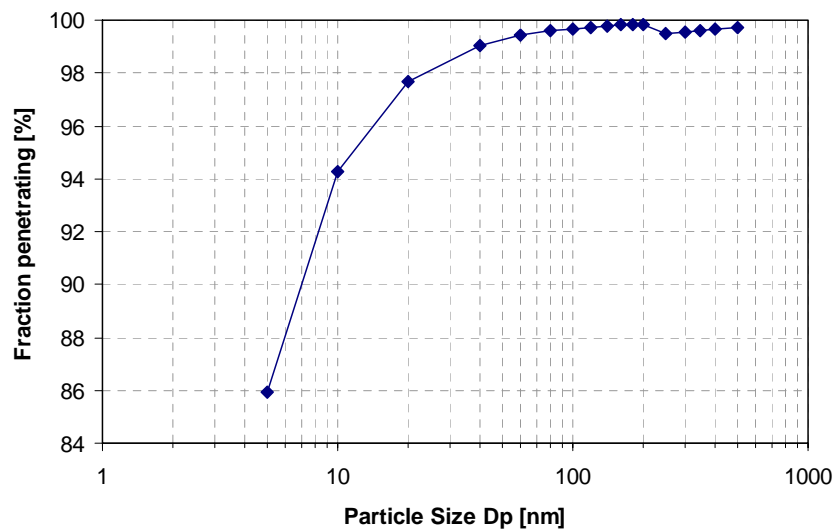


Abbildung A-5: Berechnete größenabhängige Partikel-Durchgangseffizienz für das beim real-world chasing verwendete Probenahmesystem. Berücksichtigt wurden nicht-isokinetische Probenahme und Diffusionsverluste (Annahme: Fahrgeschwindigkeit = 100 km/h).