

Neuartiger Mischpotentialsensor zur Detektion von Ammoniak in Abgasen

Von der Fakultät für Ingenieurwissenschaften
der Universität Bayreuth
zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)
genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Dipl.-Ing. Daniela Schönauer-Kamin

aus

Bayreuth

Erstgutachter: Prof. Dr.-Ing. Ralf Moos
Zweitgutachter: Prof. Dr. habil. Maximilian Fleischer
Tag der mündlichen Prüfung: 16. September 2014

Lehrstuhl für Funktionsmaterialien
Universität Bayreuth

2014

Bayreuther Beiträge zur Sensorik und Messtechnik

Band 13

Daniela Schönauer-Kamin

**Neuartiger Mischpotentialsensor zur Detektion von
Ammoniak in Abgasen**

Shaker Verlag
Aachen 2015

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Zugl.: Bayreuth, Univ., Diss., 2014

Copyright Shaker Verlag 2015

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-3346-5

ISSN 1862-9466

Shaker Verlag GmbH • Postfach 101818 • 52018 Aachen

Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9

Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Träume nicht dein Leben,
sondern lebe deinen Traum.
Denn Träume setzen Ziele
und Ziele kannst du erreichen.

Vorwort der Herausgeber

Zunehmend verschärfte Emissionsgrenzen erfordern neuartige Abgasnachbehandlungstechniken. Für magerbetriebene Otto- und für Dieselmotoren scheint sich das Ammoniak-SCR-Verfahren durchzusetzen. Bei diesem Verfahren wird eine Harnstoffwasserlösung in das Abgas eindosiert. In einem Hydrolysekatalysator entsteht Ammoniak, welcher am SCR-Katalysator als Reduktionsmittel selektiv Stickoxide zu reduzieren vermag. Im Rahmen der sog. On-Board-Diagnose müssen alle Abgasnachbehandlungseinrichtungen im Automobil ständig auf ihre korrekte Funktion hin überprüft werden. Hierfür und zur Regelung eines Ammoniak-SCR-Systems bietet sich ein selektiver Ammoniakgassensor an, den man allerdings in der rauen Umgebungsatmosphäre im Auspuff auch langzeitstabil betreiben können muss.

Hier setzt die vorliegende Arbeit an. Eine Möglichkeit, Ammoniak zu detektieren, stellen Mischpotentialsensoren auf Basis von ionenleitendem Zirkonoxid dar, bei denen sich zwischen zwei unterschiedlichen Elektroden eine Potentialdifferenz einstellt, die von der Konzentration der Abgaskomponente abhängt. Während die Referenzelektrode eher einfach zu realisieren ist, werden für die aktive Elektrode oft komplexe Metalloxide eingesetzt. Diese müssen sowohl elektrisch leitfähig als auch katalytisch selektiv und zugleich im Autoabgas langzeitstabil sein. Die vorliegende Arbeit verfolgt den Weg, diese Funktionen zu trennen, indem eine von zwei gleichen Elektroden zusätzlich mit einer katalytisch aktiven Beschichtung versehen ist, die sich bereits im Abgas von Verbrennungsmotoren und Entstickungsanlagen bewährt hat.

Einen solchen Sensor aufzubauen, ihn zu charakterisieren und zu optimieren und ihn für den Einsatz im Realabgas zu testen, ist ein Schwerpunkt dieser Arbeit. Weiterhin werden Halbzellen aufgebaut und untersucht, um den Einfluss von Teilkomponenten des Sensors zu analysieren und um den Sensormechanismus im Rahmen der Mischpotentialtheorie zu beschreiben.

Bayreuth im Oktober 2014

Prof. Dr.-Ing. Ralf Moos, Prof. Dr.-Ing. Gerhard Fischerauer

Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertation beschäftigt sich mit einem neuartigen Sensor auf Mischpotentialbasis zur Detektion von Ammoniak im Abgas von Diesel-betriebenen Verbrennungsmotoren oder industriellen Anlagen wie Rauchgasanlagen. Ziel war es, einen Ammoniak-sensor für den Einsatz im Abgasstrang zu realisieren, der aufgrund seines einfachen planaren Aufbaus in Dickschichttechnologie hergestellt werden kann.

Der vorgestellte Mischpotentialsensor besteht aus einer Festelektrolytschicht (Yttrium-stabilisiertes Zirkonoxid), zwei *gleichen* Goldelektroden und einer katalytisch aktiven SCR-Katalysatorschicht (selektive katalytische Reduktion) auf *einer* der Elektroden. Dieser „geschichtete“ Aufbau einer Elektrode (Edelmetall plus Katalysatorschicht) stellt den Unterschied zu bekannten Mischpotentialsensoren dar. Der neuartige Sensor benötigt weder zusätzliche Referenzelektroden noch komplexe Materialmischungen, da abgaserprobte Materialien verwendet werden. Es hat sich gezeigt, dass der Sensor eine hohe Empfindlichkeit auf NH_3 aufweist. Das Sensorsignal, die Potentialdifferenz, nimmt dabei linear mit dem Logarithmus der NH_3 -Konzentration zu. Der Einsatz des NH_3 -Sensors stromabwärts des SCR-Katalysators könnte zu einer NO_x -Umsatzsteigerung des SCR-Systems beitragen, was sowohl den Reduktionsmittelverbrauch als auch die NO_x -Emissionen minimieren könnte.

Die Arbeit fokussierte dabei auf folgende Punkte:

- Die Untersuchung der Sensorcharakteristik des neuartigen Sensorprinzips
- Die Beantwortung der Frage, ob dieser neuartige Sensor zur Regelung und On-Board Diagnose von SCR-Abgasnachbehandlungssystemen geeignet ist
- Eine umfassende Analyse der Beiträge der Einzelkomponenten des Sensors an der NH_3 -Empfindlichkeit
- Die Ermittlung aller das Sensorverhalten beeinflussenden Faktoren
- Die modellhafte Beschreibung des Sensormechanismus

Die Arbeit lässt sich in drei Schwerpunkte untergliedern. Im ersten Teil wurde das Sensorverhalten des vorgestellten neuartigen Mischpotentialsensors zur NH_3 -Detektion ausführlich untersucht. Der zweite Teil beschäftigte sich mit der Untersuchung der Einflüsse der

Einzelkomponenten des Sensors auf die NH_3 -Sensorcharakteristik, auch im Hinblick auf eine Optimierung der sensitiven Eigenschaften. Der dritte Schwerpunkt lag auf der Aufklärung des Sensormechanismus durch eine elektrochemische Charakterisierung des Verhaltens der beteiligten elektrochemischen Halbzellen. Abschließend wurden die gewonnenen Erkenntnisse in eine modellhafte Beschreibung der am Sensoreffekt beteiligten Prozesse überführt.

Die Analyse des grundlegenden Sensorverhaltens wurde mit planaren Sensoren mit Goldelektroden auf einer Festelektrolytschicht, wovon eine mit einer Vanadium-Wolfram-Titanoxid (VWT)-Katalysatorschicht abgedeckt wurde durchgeführt. Die Sensoren wurden mit einem integrierten Heizelement selbstbeheizt und im Synthesegas auf entsprechende Sensortemperatur gebracht. Bei 550°C wurde eine über einen großen NH_3 -Konzentrationsbereich halblogarithmische Kennlinie festgestellt. Ein O_2 -Einfluss auf die NH_3 -Empfindlichkeit liegt vor, der ab 5 % O_2 vernachlässigbar ist. Die Gaskomponenten NO_2 , H_2 und CO führen ebenso zu einer Signaländerung, während NO und KW vernachlässigt werden können.

Ein realabgasnaher Test stromabwärts eines SCR-Katalysators zeigte eine gute Übereinstimmung von Sensorsignal und daraus berechneter NH_3 -Konzentration und der mittels Gasanalytik gemessenen NH_3 -Konzentration.

Die Sensorkomponenten Elektrode und Katalysator wurden unabhängig voneinander variiert, um den Einfluss der Einzelkomponenten zu untersuchen. Dazu wurden die Sensoren auf Festelektrolytsubstrate aufgebaut und in einem Ofen fremdbeheizt charakterisiert. Zwischen den Sensorvarianten Festelektrolytschicht und -substrat konnten deutliche Empfindlichkeitsunterschiede festgestellt werden. Die Einflüsse von Elektrodenmaterial (Gold / Platin) und Porosität der Elektrode wurden untersucht. Als Fazit ergab sich, dass Sensoren mit zwei Goldelektroden das beste Verhalten mit hoher NH_3 -Empfindlichkeit besitzen.

Der Einfluss der Katalysatorschicht wurde sehr ausführlich untersucht. Als optimal wurde eine Katalysatorschichtdicke im Bereich von $10\text{ }\mu\text{m}$ ermittelt. Eine vollständige Bedeckung der Goldelektrode mit Katalysatormaterial lieferte die höchsten Empfindlichkeiten. Über das elektrische Ersatzschaltbild des Sensors konnte dieses Ergebnis rechnerisch bestätigt werden.

In Abhängigkeit vom Katalysatormaterial wurde ein unterschiedliches Sensorverhalten festgestellt. Mit steigendem Vanadiumoxidgehalt der VWT-Schicht erhöhte sich die NH_3 -Empfindlichkeit deutlich.

Die anschließende elektrochemische Charakterisierung der Halbzellen des Sensors diente der getrennten Untersuchung der an den beiden Sensorelektroden ablaufenden Effekte. Als

das Sensorsignal dominierende Elektrode wurde die mit dem Katalysatormaterial beschichtete Elektrode identifiziert. Das Elektrodenpotential der Halbzelle VWT, Au|YSZ verhält sich dem des planaren Sensors sehr ähnlich. Jedoch zeigte auch das Elektrodenpotential der Au|YSZ-Halbzelle eine NH_3 -Abhängigkeit. Die Halbzellenuntersuchungen bestätigten die Ergebnisse der Variation von Bedeckungsgrad und Katalysatormaterial.

Polarisationskurven dienten dabei der Aufklärung des Sensormechanismus. Die Ausbildung von Mischpotentialen durch elektrochemische Reaktionen von O_2 und NH_3 an den Dreiphasengrenzen konnte damit an beiden Elektroden, der beschichteten und der unbeschichteten Elektrode, nachgewiesen werden.

Die Erkenntnisse resultierten abschließend in einer modellhaften Beschreibung des Sensormechanismus, in dem alle das Sensorverhalten beeinflussende Parameter aufgenommen und diskutiert wurden.

Der vorgestellte neuartige Sensor besitzt ein großes Potential zur Detektion von NH_3 im Abgasstrang und weist auch die dafür notwendige Stabilität auf. Der Sensor wird als geeignet angesehen, um stromabwärts des SCR-Katalysators auch geringe NH_3 -Konzentrationen zu detektieren. Ein wesentlicher Vorteil ist der Einsatz realabgastauglicher Katalysatormaterialien zur Elektrodenbeschichtung. Der „geschichtete“ Aufbau bietet zudem die Möglichkeit die Edelmetallelektrode und das Katalysatormaterial unabhängig voneinander zu verändern und an die gewünschten Anforderungen anzupassen. Im Hinblick auf den Einsatz des NH_3 -Sensors im Realabgas sollten sich zukünftige Untersuchungen mit den vorhandenen Querempfindlichkeiten und der Reproduzierbarkeit der Sensorherstellung beschäftigen.

Summary

Within the scope of the present work, a novel sensor is investigated for ammonia detection in diesel combustion engines or industrial flue gases. The goal is a functional exhaust sensor which can be produced using thick film technology in a planar setup.

The proposed sensor, based on mixed potential principle, consists of a solid-electrolyte thick film (yttria-stabilized zirconia), two *equivalent* gold electrodes, with a selective catalytic reduction (SCR) catalyst layer on top of *one* of them. This „layered“ setup of one electrode (noble metal layer plus catalyst coverage film) is in contrast to other known mixed potential sensors. The proposed sensor requires no additional reference electrodes, and no complex material mixtures due to the utilization of exhaust-stable materials. It turned out that the proposed sensor provides high ammonia sensitivity, with a sensor signal, measured as potential difference, which increases linearly with the logarithm of the NH_3 concentration. Furthermore, an NH_3 -sensor downstream of the SCR catalyst could contribute to an increasing NO_x conversion efficiency of the SCR system, thus minimizing the consumption of the reducing agent as well as the emissions of NO_x .

The study had several key objectives:

- To analyze the sensing characteristics of this novel sensor principle
- To address the question, whether or not this novel sensor is appropriate for control and on-board diagnosis of SCR exhaust aftertreatment systems
- To conduct a comprehensive study to determine the contribution of individual sensor components on the NH_3 sensitivity
- To determine all parameters which influence the sensing behavior
- To theoretically describe the sensor mechanism

The work can be divided into three main sections. The first part deals with a detailed analysis of the sensing behavior of the suggested novel mixed potential type sensor for ammonia detection. The focus of the second part is to investigate the contribution of each single sensor component on the ammonia sensor signal, particularly with regard to optimized sensor characteristics. Thirdly, the behavior of participating electrochemical half-cells was characterized electrochemically to elucidate the sensing mechanism. Integration

of all findings resulted in a theoretical description of the processes involved in the sensor mechanism.

The primary sensor was constructed with gold electrodes on a solid electrolyte layer, one of them covered by a vanadia-doped tungstenia-titania (VWT) catalyst film. The sensor was self-heated by an internal heating element in synthetic exhaust gas. A semi-logarithmic characteristic voltage curve was observed over a wide concentration range of NH_3 at 550°C . The NH_3 sensitivity is affected by the O_2 concentration but the effect is marginal above 5 % O_2 . The gas components NO_2 , H_2 and CO result in a signal change as well. In contrast, NO and HCs can be neglected.

An examination of the NH_3 sensor downstream of an SCR catalyst at conditions similar to real exhausts provided a good agreement between sensor signal and the calculated ammonia concentration, and the ammonia concentration measured by a gas analyzer.

Electrode and catalyst, two main sensor components, were varied independently of each other to study the effects of the sensor components separately. For this purpose, sensors built up on solid electrolyte substrates were heated externally by a tube furnace. The sensitivities of the different sensor types with solid electrolyte layer and substrates indicate distinct differences. The influences of different electrode materials (gold or platinum) and of the porosity of the electrodes were analyzed. As a result, sensors with two gold electrodes showed the best sensor performance with respect to high NH_3 sensitivities.

The influence of the catalyst layer was investigated in detail. An optimal thickness of the catalyst layer of about $10\text{ }\mu\text{m}$ was determined. Gold electrodes completely covered by the catalyst film provided the highest sensitivities. This result was confirmed by the electrical equivalent circuit diagram of the sensor.

The catalyst composition strongly affected the sensing behavior, especially the ammonia sensitivity increased with the vanadia-content of the VWT layer.

Processes taking place at each sensor electrode were investigated by the electrochemical characterization of the half-cells of the sensor separately. The catalyst covered electrode was identified as the dominating electrode. It is responsible for the ammonia sensor response. The electrode potential of the half-cell VWT, $\text{Au}|\text{YSZ}$ behaves similar to the planar sensor device itself. However a slight NH_3 dependent potential change occurred even at the half-cell $\text{Au}|\text{YSZ}$. The half-cell experiments also validated the results of varying coverage degrees and catalyst material compositions.

Polarization curves served to elucidate the sensing mechanism. The formation of mixed potentials by electrochemical reactions of O_2 and NH_3 at the three phase boundaries could be verified at both gold electrodes, coated and uncoated.

These findings yielded in a theoretical description of the sensing mechanism, in which all sensor parameters are included and discussed.

The proposed novel sensor shows great potential for ammonia detection in exhaust pipes and displays the required stability for it as well. The sensor is appropriate to detect even small ammonia concentrations downstream of the SCR catalyst. An important advantage is the application of catalyst materials as electrode coverage which are suitable for real exhaust applications. The „layered“ electrode setup gives the opportunity to modify the noble metal electrode and the catalyst material separately and to adapt them to application requirements. With respect to practical use of the NH_3 sensor, questions regarding existing cross-interferences and reproducibility during manufacturing need to be addressed in the future.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	i
Summary	iv
1 Einleitung	1
2 Grundlagen	4
2.1 NH ₃ -SCR-System	4
2.2 Überblick über Gassensorprinzipien zur NH ₃ -Detektion	7
3 Neuartige Idee und Zielsetzung der Arbeit	13
4 Grundlagen elektrochemischer Festelektrolytsensoren und Katalysatoren	18
4.1 Elektrochemische Festelektrolytgassensoren - Stand der Forschung	18
4.1.1 Stabilisiertes Zirkonoxid	19
4.1.2 Gleichgewichtssensoren	20
4.1.3 Ungleichgewichtssensoren	22
4.1.4 Stand der Technik von Mischpotentialsensoren	28
4.2 Katalysatormaterialien	30
5 Charakterisierung des Sensorverhaltens	38
5.1 Sensoraufbau und Sensorcharakterisierung	38
5.1.1 Sensoraufbau und -design	38
5.1.2 Sensorherstellung	40
5.1.3 Methoden zur Sensorcharakterisierung	44
5.2 Grundcharakteristik des Ammoniaksensors	48
5.2.1 Ammoniakempfindlichkeit	48
5.2.2 NO- und NO ₂ -Einfluss	51
5.2.3 Temperaturabhängigkeit	58
5.2.4 Lambdaabhängigkeit mit Variation von p_{O_2} , p_{H_2O} und p_{CO_2}	61
5.2.5 Weitere Querempfindlichkeiten	66
5.2.6 Reproduzierbarkeit	71

5.3	Anwendungsnaher Einsatz im Synthesegas	73
5.4	Zusammenfassung der Sensorcharakteristik	77
6	Analyse und Optimierung des Einflusses der Einzelkomponenten	79
6.1	Experimentelles der Einzelkomponentenanalyse	79
6.2	Umsatzmessungen an Pulverschüttungen	85
6.3	Gegenüberstellung des Verhaltens verschiedener Sensorvarianten	86
6.4	Einfluss der Elektrodenbeschaffenheit	88
6.4.1	Variation des Elektrodenmaterials	88
6.4.2	Einfluss der Porosität der Goldelektrode	91
6.5	Einfluss der Eigenschaften des VWT-Standard-Katalysators	96
6.5.1	Katalysatorbedeckung	96
6.5.2	Katalysatorschichtdicke	100
6.6	Einfluss der Katalysatorzusammensetzung	104
6.6.1	VWT-basierte Katalysatoren	104
6.6.2	Zeolith-basierte Katalysatoren	109
6.7	Zusammenfassung der Einzelkomponentenanalyse	116
7	Elektrochemische Charakterisierung der Halbzellenpotentiale	119
7.1	Theoretische Herleitung des Mischpotentials einer Elektrode	119
7.2	Experimentelles	124
7.2.1	Zweikammeraufbau	124
7.2.2	Elektrochemische Analysemethoden	125
7.2.3	Optische Charakterisierung	127
7.3	Charakterisierung der Elektrodenpotentiale	128
7.4	Bestimmung von Polarisationskurven	140
7.5	Zusammenfassung der Charakterisierung der Halbzellen	159
8	Modellhafte Beschreibung des Sensormechanismus	162
9	Fazit und Ausblick	173
Anhang		179
A.1	Pasten	180
A.2	Ofenprofile	181
A.3	Lambdavaration	183
A.4	Netzwerkanalyse des elektrischen Ersatzschaltbildes des Sensors	184
A.5	Herleitung des Mischpotentials aus der Tafel-Näherung	185

A.6 Herleitung des Mischpotentials aus der linearen Näherung der Butler-Volmer-Kinetik	188
Abkürzungen und Symbole	189
Literaturverzeichnis	192
Verzeichnis der eigenen Publikationen	205
Danksagung	212
Lebenslauf	214

1 Einleitung

Immer strenger werdende Richtlinien zur Minderung von Luftschadstoffen, durch die die Emissionen industrieller Anlagen und der Fahrzeuge limitiert werden, führten in den letzten Jahren zur Einführung neuer Abgasnachbehandlungskonzepte. Neben Schadstoffen wie Stickoxiden (NO_x), Kohlenwasserstoffen (KW), Kohlenmonoxid (CO) und Partikeln (PM), die speziell im Fahrzeugbereich durch die Euro-Abgasnormen limitiert sind, gelten auch Schwefeloxide (SO_2), Ammoniak (NH_3) und flüchtige organische Verbindungen (VOCs) als Luftschadstoffe. Der Ausstoß ist durch die „Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen vom 2. August 2010 (39. BImSchV)“ und durch die „Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft (TA-Luft)“ limitiert [1, 2].

Die deutliche Zunahme von Diesel-betriebenen Fahrzeugen (PKW-Sektor und LKW) in den letzten Jahren (Marktanteil PKW 2012 - 48 %) [3] führte zu steigenden NO_x - und PM-Emissionen und damit zu neuen Abgasnachbehandlungssystemen, um die Euro-V- bzw. Euro-5-Abgasnormen zu erfüllen. Inzwischen (seit 2013) gilt im Nutzfahrzeugsektor bereits die Euro-VI-Norm und ab 2015 wird die Euro-6-Norm auch für Diesel-PKW wirksam, die eine weitere Reduzierung der NO_x -Grenzwerte vorsieht [4, 5]. Um die PM-Emissionen zu verringern, hat sich der Dieselpartikelfilter etabliert, während zur Minimierung der NO_x -Emissionen neben innermotorischen Maßnahmen zwei Abgasnachbehandlungssysteme, der NO_x -Speicherkatalysator und der SCR-Katalysator (Selective Catalytic Reduction), diskutiert werden [6].

Das SCR-System wird seit 2004 im Nutzfahrzeugsektor eingesetzt und ist aus der Rauchgasentstickung industrieller Abgase bekannt. Bei diesem Verfahren werden an einem SCR-Katalysator die zu reduzierenden Stickoxide mit zudosiertem NH_3 katalytisch reduziert und so aus dem Abgas entfernt. Zum effizienten Betrieb mit hohen NO_x -Konversionsraten und geringen NH_3 -Emissionen ist eine Regelung des Systems notwendig. Die Emission von stechend riechendem und giftigem NH_3 soll dabei ebenso vermieden werden. Die maximale Arbeitsplatzkonzentration (MAK-Wert) liegt bei 20 ppm NH_3 (8-Stunden-Mittelwert; der Kurzzeitgrenzwert liegt bei 50 ppm) und in der TA-Luft ist die maximal erlaubte Konzentration im Abgas auf 21 ppm NH_3 limitiert [2, 7]. Zudem fordert der Gesetzgeber eine Überwachung aller für die Abgasnachbehandlung relevanten Systeme während des Fahrzeugbetriebs (sogenannte On-Board-Diagnose). Dies kann durch den Einsatz geeigneter Abgassensoren, die die Konzentrationen an NO_x oder NH_3 stromabwärts des Katalysators

überwachen, realisiert werden. Nach [8] bietet die Regelung durch einen NH_3 -Sensor im Vergleich zur Regelung mittels NO_x -Sensor, der sich derzeit im Einsatz befindet, Vorteile, vor allem hinsichtlich der Steigerung des NO_x -Umsatzes.

Jedoch gibt es derzeit noch keinen verfügbaren NH_3 -Sensor, der den Anforderungen im Abgasstrang gerecht werden kann. Ein Großteil der verfügbaren NH_3 -Sensoren arbeitet im Niedertemperaturbereich und weist nicht die für den Einsatz unter rauen Umgebungsbedingungen im Abgasstrang notwendige thermische Stabilität, Funktionalität bei Temperaturen über 500°C und Langzeitstabilität auf [9]. Der Detektionsbereich eines Sensors für SCR-Anwendungen soll im Bereich 1-100 ppm NH_3 liegen.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit einem neuartigen NH_3 -Sensortyp auf Mischpotentialbasis, der besonders angepasst an die Anforderungen des SCR-Systems sein soll. Der neuartige Sensor besteht aus einem Festelektrolyten als Sauerstoffionenleiter, zwei gleichen Elektroden in Kontakt mit dem Abgas und einer katalytisch aktiven Beschichtung *einer* Elektrode. Sogenannte Festelektrolytsensoren wie z.B. Lambdasonden, Sauerstoffsensoren und NO_x -Sensoren werden bereits seit Jahren im Abgas eingesetzt und haben sich hinsichtlich Stabilität und Robustheit bewährt. Auch Mischpotentialsensoren wird ein großes Potential zur Gasetektion im Abgasstrang zugeschrieben, da sie ähnlich wie die Lambdasonde auf hochtemperaturstabilen Festelektrolyten basieren. Um der Frage nach der (Langzeit-)Stabilität der meist eingesetzten selektiven Elektrodenmaterialien für Mischpotentialsensoren, die oft aus komplexen Metalloxiden versetzt mit stabilisierenden Dopanten bestehen, zu entgehen, werden für den in dieser Arbeit untersuchten NH_3 -Sensor Edelmetallelektroden aus Gold oder Platin mit aus der Abgaskatalyse bekannten Materialien für SCR-Katalysatoren beschichtet. Als Katalysatormaterialien dienen dafür Vanadium-Wolfram-Titanoxid (VWT) (Einsatz in Nutzfahrzeugen und zur Rauchgasentstickung) und Fe-ausgetauschte Zeolithe, die bereits auf den Langzeiteinsatz im Abgasstrang angepasst sind.

Im Rahmen dieser Arbeit wird das Verhalten des neuartigen NH_3 -Sensors hinsichtlich selektiver NH_3 -Detektion und Querempfindlichkeiten analysiert. Realabgasnahe Untersuchungen stromabwärts eines SCR-Katalysators liefern vielversprechende Ergebnisse. Ein Einsatz dieses NH_3 -Sensors zur Regelung und On-Board-Diagnose des SCR-Systems im Fahrzeug oder zur Regelung von Rauchgasentstickungsanlagen erscheint möglich. Die Untersuchung der Einflüsse beteiligter Einzelkomponenten am Sensorsignal zeigt die den Sensoreffekt beeinflussenden Parameter auf. Das Sensorverhalten wird durch Variation der verschiedenen Parameter optimiert. Ein spezieller Aufbau zur Charakterisierung von Halbzellenpotentialen der Sensorhalbzellen ermöglicht die Zuordnung des Sensoreffekts zu der mit dem Katalysator abgedeckten Elektrode. Die elektrochemische Charakterisierung bestätigt zudem, dass der vorliegende Sensormechanismus auf der Mischpotentialtheorie

basiert, jedoch heterogene Katalysereaktionen und Adsorptionsprozesse nicht vernachlässigbar sind. Abschließend wird der Sensormechanismus modellhaft beschrieben.