

Forschungszentrum Karlsruhe
Technik und Umwelt

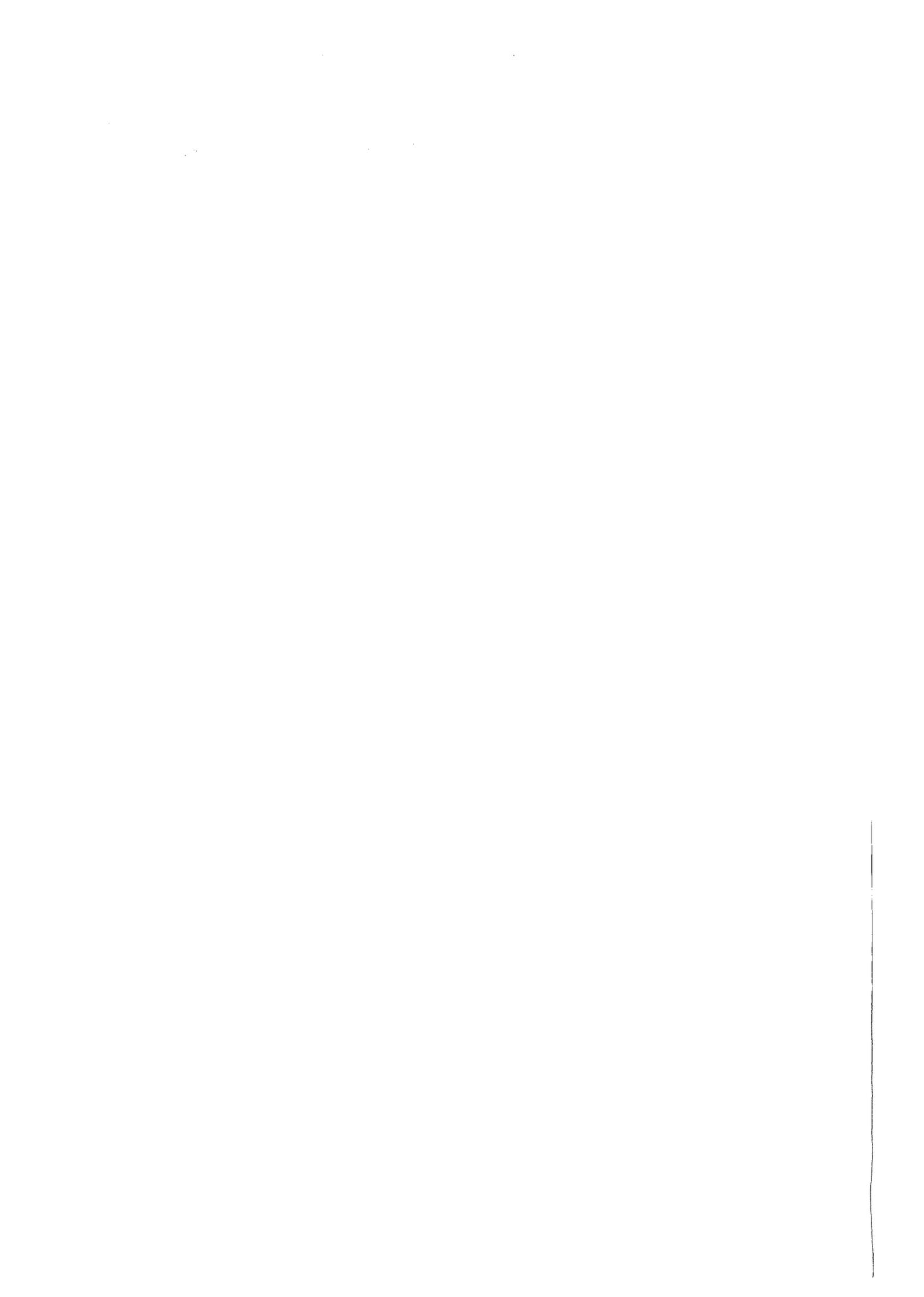
Wissenschaftliche Berichte
FZKA 6183

Einfluß der relativen Feuchte auf die Größe von Flugaschepartikeln

H. Haryanto

**Institut für Technische Chemie
Projekt Schadstoff- und Abfallarme Verfahren**

September 1998



Forschungszentrum Karlsruhe

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6183

**Einfluß der relativen Feuchte auf die Größe
von Flugaschepartikeln**

H. Haryanto

Institut für Technische Chemie

Projekt Schadstoff- und Abfallarme Verfahren

Vom Fachbereich Maschinenbau der Fachhochschule Karlsruhe

Hochschule für Technik genehmigte Diplomarbeit

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

1998

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe
Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)
ISSN 0947-8620

Zusammenfassung

Einfluß der relativen Feuchte auf die Größe von Flugaschepartikeln

In der vorliegenden Arbeit wurde das Partikelwachstum von Flugasche aus der TAMARA-Versuchsanlage in Abhängigkeit von der relativen Feuchte und von der Massenkonzentration untersucht. Dazu wurde die Flugasche mit Hilfe eines Feststoffdispergierers in ein Strömungssystem dispergiert. Aus dem Strömungssystem wurde die Probe isokinetisch entnommen. Zur Messung der Größenverteilung der Flugasche stand ein Streulichtanalysator für den Meßbereich von 0,3 bis 20 μm zur Verfügung. Als Vergleich bei der Bestimmung des Modalwertes der Größenverteilung im Trockenzustand diente die Rasterelektronenmikroskopie (REM).

Im Trockenzustand ergibt sich, daß ein Teil der Flugaschepartikeln kleiner als 0,3 μm ist, so daß keine vollständige Partikelgrößenverteilung der Flugasche vom Streulichtanalysator erfaßt wird. Trotzdem liefert die Auswertung der PCS-Messungen nach Korrekturmaßnahmen gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der REM-Auswertung. Es wurde auch bewiesen, daß die vom Streulichtmeßgerät erfaßte Verteilung ungefähr die Hälfte von der vollständigen Verteilung ist.

Bei Erhöhung der relativen Feuchte im Strömungssystem wurde bis zu einem Wert von ca. 65 % r.F. keine Änderung der Größenverteilung beobachtet. Erhöht man die relative Feuchte weiter, wird eine Verringerung der Verteilungsbreite beobachtet. Die Abnahme der Verteilungsbreite kennzeichnet das Wachstum von Partikeln durch Kondensation. Dabei wurde ein Anwachsen der Flugaschepartikeln festgestellt.

Das beobachtete Partikelwachstum war kleiner als erwartet. Bei einer relativen Feuchte von 99 % beträgt das maximale Partikelwachstum etwa einen Faktor 1,7. Das ist gering im Vergleich zu dem Wachstum von Salzpartikeln. Das läßt sich zum einen möglicherweise damit erklären, daß die elementare Zusammensetzung der Flugasche wasserunlösliche Anteile enthält, die die hygroskopische Eigenschaft der Flugasche im Vergleich zu reinen Salzpartikeln vermindern. Darüber hinaus könnte durch die unregelmäßige Form der Flugaschepartikel zunächst eine Verkleinerung statt Vergrößerung der Partikelgröße am Anfang der Wachstumsstrecke stattfinden. Danach steigt die Partikelgröße wieder, so daß das gemessene Wachstum klein erscheint.

Summary

The influence of relative humidity on the size of fly ash particles

The present paper describes investigations on the growth of fly ash particles in dependence of relative humidity and mass concentration. The fly ash particles were sampled at the TAMARA test plant and added to the humidified air stream of a flow system by use of a commercial particle generator. Samples were taken isokinetically. The particle size distribution was measured by a light scattering particle counter which operates in the size range 0.3 - 20 μm . For comparison, the dry particle size distribution was determined by scanning electron microscopy (SEM).

A significant portion of the dry fly ash particles was found to have diameters below 0.3 μm . Hence, this fraction escapes the detection by the light scattering particle counter and the resulting size distribution appears incomplete. By comparison with SEM results, it was shown that only about one half of the size distribution of the dry fly ash particles is detected by the light scattering particle counter. A numerical correction was investigated and evaluated which permits to derive valuable results from the measured incomplete particle size distribution.

If the relative humidity in the flow system is increased up to about 65 %, no change of the size distribution can be detected. Further increase of the relative humidity leads to an increase of the particle size. Simultaneously, the width of the size distribution is found to decrease. These observations are characteristic for condensational particle growth and they are in agreement with theoretical expectations.

The observed increase of the particle size was below expectations. At a relative humidity of 99 %, the particle diameter was about 1.7 times larger than the diameter of the dry particles. This increase is small in comparison to the growth of pure salt particles measured earlier with the same flow apparatus. A possible explanation is that insoluble constituents of the fly ash reduce its hygroscopicity in comparison to pure salt. This would slow down the condensational growth of the particles. Moreover, since the solid fly ash particles have irregular shapes and a corresponding low density, uptake of water vapour may be expected to transform the particles into compact spherical droplets of higher density and lower size initially. Thereafter, the droplets would undergo usual condensational growth. The overall effect on particle size, however, would appear low.

Inhaltsverzeichnis

| | Seite |
|--|-------|
| Liste der verwendeten Formelzeichen und Abkürzungen..... | 10 |
| 1 Einleitung und Zielsetzung..... | 13 |
| 1.1 Aerosolproblematik..... | 13 |
| 1.2 Ziel der Arbeit..... | 14 |
| 2 Theoretische Grundlagen..... | 16 |
| 2.1 Aerosole..... | 16 |
| 2.1.1 Aerosoldefiniton..... | 16 |
| 2.1.2 Aerosolklassen..... | 16 |
| 2.1.3 Teilaspekte der Aerosolbildung..... | 17 |
| 2.1.4 Elementare Merkmale der Aerosole..... | 18 |
| 2.2 Partikelwachstum..... | 19 |
| 2.2.1 Partikelwachstum durch Koagulation..... | 19 |
| 2.2.2 Partikelwachstum durch Kondensation..... | 21 |
| 3 Experimenteller Teil..... | 24 |
| 3.1 Versuchsanlage..... | 24 |
| 3.1.1 Beschreibung des Versuchsaufbaus..... | 24 |
| 3.1.2 Beschreibung der verwendeten Komponenten..... | 26 |
| 3.1.2.1 Befeuchtungskammer..... | 26 |
| 3.1.2.2 Aerosolerzeugung mit dem Feststoffdispergierer RBG 1000..... | 29 |
| 3.1.2.3 Die isokinetische Probenahme..... | 31 |
| 3.1.2.4 Befeuchtungsanlage..... | 33 |
| 3.1.2.5 Feuchte- und Temperaturfühler..... | 35 |
| 3.1.2.6 Durchflußmesser..... | 35 |
| 3.1.2.7 Vedünnungsstufe..... | 36 |
| 3.1.2.8 Der Gasprobenehmer DESAGA..... | 36 |
| 3.2 Das Streulicht-Partikelgrößen-Zählverfahren | 37 |
| 3.2.1 Grundlage des Streulicht-Meßverfahrens..... | 37 |
| 3.2.2 Der optische Partikelzähler PCS 2000..... | 42 |
| 3.2.3 Sensitivitätsanalyse..... | 43 |

| | |
|---|-----|
| 3.2.3.1 Fehler durch Randzoneneffekt..... | 43 |
| 3.2.3.2 Koinzidenzfehler..... | 45 |
| 3.2.3.3 Einfluß des Brechungsindex des untersuchten Stoffes..... | 47 |
| 3.2.3.4 Einfluß der Partikelform..... | 49 |
| 4 Ergebnisse | 51 |
| 4.1 Darstellung der gemessenen Partikelgrößenverteilung..... | 51 |
| 4.1.1 Verteilungsdichte-Kurve und Verteilungssummen-Kurve..... | 51 |
| 4.1.2 Einfluß der unvollständigen gemessenen Partikelgrößenverteilung auf die Bestimmung des Modalwertes in Verteilungssummen-Kurve..... | 56 |
| 4.2 Fehlerbetrachtung..... | 59 |
| 4.3 Eigenschaften der Flugasche..... | 61 |
| 4.4 Versuchsvorbereitende Messungen..... | 63 |
| 4.4.1 Aufbereitung der Flugasche..... | 63 |
| 4.4.2 Ermittlung der Volumenstromkurve des Feststoffdispergierers RBG 1000..... | 63 |
| 4.4.3 Kalibrierung des Streulichtanalysators PCS 2000..... | 65 |
| 4.4.4 Filtermessungen zur Bestimmung der Massenkonzentration an der Probenahmestelle..... | 68 |
| 4.5 Auswertung der Partikelgrößenverteilung der Flugasche im trockenen Zustand..... | 71 |
| 4.6 Auswertung der Partikelgrößenverteilung der Flugasche im feuchten Zustand..... | 76 |
| 4.6.1 Wachstum der Flugaschepartikel durch Kondensation..... | 76 |
| 4.6.2 Änderung der Verteilungsbreite beim Wachstum der Flugaschepartikel..... | 85 |
| 5 Diskussion der Ergebnisse und Ausblick auf weitere Untersuchungen..... | 90 |
| 5.1 Diskussion der Zunahme der gemessenen Partikelanzahlkonzentration..... | 90 |
| 5.2 Diskussion des Wachstums der Flugaschepartikel durch Kondensation..... | 93 |
| 5.3 Modell zum Wachstum der Flugaschepartikel..... | 94 |
| 6 Literaturverzeichnis..... | 96 |
| Anhang..... | 102 |

Verzeichnis der Abbildungen

| | |
|--|----|
| Bild 1. Teilaspekte der Aerosolbildung..... | 17 |
| Bild 2. Die Abnahme der Partikelanzahlkonzentration durch Koagulation bei verschiedenen Durchmessern..... | 20 |
| Bild 3. Auswirkung der Koagulation für den Durchmesser $D_p=0,5\mu\text{m}$ bei verschiedenen Partikelanzahlkonzentrationen..... | 20 |
| Bild 4a. Abhängigkeit des Durchmessers einer NH_4Cl -Partikel von der relativen Feuchte bei Raumtemperatur..... | 22 |
| Bild 4b. Darstellung der Salzpartikel am Zerfließpunkt..... | 23 |
| Bild 5. Versuchsaufbau..... | 25 |
| Bild 6. Befeuchtungskammer..... | 26 |
| Bild 7. Das Funktionsschema des Bürstendosierers..... | 29 |
| Bild 8. Zur Definition der isokinetischen Probenahme für dünnwandige Sonde [5]..... | 32 |
| Bild 9. Die Probennahmesonde..... | 33 |
| Bild 10. Die Befeuchtungsanlage..... | 34 |
| Bild 11. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für monochromatisches Licht im Partikelgrößenbereich unterhalb der Lichtwellenlänge [39]..... | 39 |
| Bild 12. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für monochromatisches Licht im Partikelgrößenbereich der <i>Mie-Streuung</i> [39]..... | 40 |
| Bild 13. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für Glühlicht im Partikelgrößenbereich der <i>Mie-Streuung</i> mit mittlerem Streuwinkel $\theta = 90^\circ$ [39]..... | 41 |
| Bild 14. Prinzipieller Aufbau des Streulichtanalysator PCS 2000..... | 42 |
| Bild 15. Querschnitt durch die unterschiedlich großen Meßvolumen des PCS 2000..... | 44 |

| | |
|--|----|
| Bild 16. Vergleich der Mehrfachmessung einer Kugel und eines unregelmäßig geformten Teilchens [34] | 49 |
| Bild 17. Darstellung einer Partikelgrößenverteilung mit logarithmischer Intervallbreite $\Delta \log D_p$ | 52 |
| Bild 18. Häufigkeitssumme der Anzahlverteilung als Funktion der Partikelgröße D_p | 53 |
| Bild 19. Verteilungssumme im logarithmischen Wahrscheinlichkeitsnetz..... | 54 |
| Bild 20. Verteilungsdichte-Kurve mit modifizierter halber Partikelgrößenverteilung..... | 57 |
| Bild 21. Verteilungssummen-Kurve mit voller und halber Partikelgrößenverteilung..... | 57 |
| Bild 22. Elektronenmikroskopische Aufnahme von Flugaschepartikeln..... | 62 |
| Bild 23. Versuchsanordnung zur Bestimmung des Volumenstroms in Abhängigkeit vom Vordruck..... | 63 |
| Bild 24. Volumenstromkurve für RBG 1000 mit dem Dispergierkopf A..... | 64 |
| Bild 25. Anzahlverteilungsdichte eines Aerosols aus zwei Latexsuspensionen [27]..... | 66 |
| Bild 26. Darstellung der mit dem Streulichtanalysator gemessenen Partikeldurchmesser (0,503 μm , 0,701 μm und 2,013 μm)..... | 67 |
| Bild 27. Versuchsaufbau für die Filtermessungen..... | 69 |
| Bild 28. Partikelgrößenverteilung der Flugasche im Trockenzustand in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers..... | 71 |
| Bild 29. Verteilungsdichte-Kurve der Flugaschepartikeln und die Ausgleichskurve..... | 73 |
| Bild 30. Verteilungssummen-Kurve der Flugaschepartikel..... | 73 |
| Bild 31. Die Auswertung der REM-Aufnahme ($D_{\text{Mod,REM}} = 0,365 \mu\text{m}$) | 74 |
| Bild 32. Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger relativer Feuchte..... | 75 |
| Bild 33. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3 | 79 |
| Bild 34. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m^3 | 82 |
| Bild 35. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 500 mg/m^3 | 84 |

| | |
|---|----|
| Bild 36. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m ³ | 86 |
| Bild 37. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m ³ | 87 |
| Bild 38. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 500 mg/m ³ | 88 |
| Bild 39. Die Änderung der Verteilungsbreite beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m ³ | 89 |
| Bild 40. Die Zunahme der Anzahlkonzentration der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m ³ | 91 |
| Bild 41. Die Zunahme der Anzahlkonzentration der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m ³ | 92 |
| Bild 42. Modell zum Wachstum der Flugaschepartikel..... | 93 |

Tabellenverzeichnis

| | |
|---|----|
| Tabelle 1. Diffusionskonstante (D) in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers (D _p) [5]... 19 | |
| Tabelle 2. Betriebsdaten des Befeuchtungskammers..... | 28 |
| Tabelle 3. Elementaranalyse der Flugasche [55]..... | 61 |
| Tabelle 4. Mit dem Streulichtanalysator gemessene Partikeldurchmesser..... | 66 |
| Tabelle 5. Versuchsergebnisse der Filtermessungen mit und ohne Drahtgewebe..... | 70 |
| Tabelle 6. Versuchsergebnisse der Filtermessungen bei verschiedenen Massenkonzentrationen..... | 70 |
| Tabelle 7. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung im feuchten Zustand mit der Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m ³ | 78 |
| Tabelle 8. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung im feuchten Zustand mit der Anfangsmassenkonzentration von ca. 50 mg/m ³ | 80 |
| Tabelle 9. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung im feuchten Zustand mit der Anfangsmassenkonzentration von ca. 500 mg/m ³ | 83 |

Liste der verwendeten Formelzeichen und Abkürzungen

Lateinische Buchstaben

| <i>Formelzeichen</i> | <i>Einheit</i> | <i>Physikalische Größe</i> |
|----------------------|-------------------------------------|---|
| A | [m ²] | Querschnittsfläche des RBG-Kolbens |
| c _{N,max} | [m ⁻³] | maximale Anzahlkonzentration |
| c _m | [kg · m ⁻³] | Massenkonzentration |
| d | [m] | Teilchendurchmesser |
| D | [m ² · s ⁻¹] | Diffusionskoeffizient |
| D _p | [m] | Partikeldurchmesser |
| D ₁₆ | [m] | Durchmesser beim 16 %-Wert der Summenverteilung |
| D ₅₀ | [m] | Durchmesser beim 50 %-Wert der Summenverteilung |
| D ₈₄ | [m] | Durchmesser beim 84 %-Wert der Summenverteilung |
| D _o | [m] | oberer Intervallgrenzdurchmesser |
| D _u | [m] | unterer Intervallgrenzdurchmesser |
| D _{Mod} | [m] | Modalwert |
| D _{Mod,A} | [m] | Durch Ausgleichskurvenanpassung ermittelter Modalwert |
| D _{Mod,K} | [m] | durch Verteilungssummenkurve ermittelter korrigierter Modalwert |
| D _{Mod,V} | [m] | durch Verteilungssummenkurve ermittelter Modalwert |
| K | [m ³ · s ⁻¹] | Koagulationskonstante |
| K _N | [-] | Knudsenzahl |
| L | [m] | Höhe des mit Feststoff eingefüllten Behälters |
| m | [-] | komplexes Brechungsindex eines Materials |
| ṁ | [kg · s ⁻¹] | Feststoffmassenstrom |

| | | |
|------------|---------------------------------------|--|
| Δm | [kg] | Masse des Feststoffes im Behälter |
| N | [m ⁻³] | gemessene Partikelanzahl/Gesamtanzahlkonzentration |
| N_0 | [m ⁻³] | Anfangspartikelanzahlkonzentration |
| p | [Pa] | Druck |
| p_d | [Pa] | Dampfdruck an der Oberfläche eines Tropfens |
| p_0 | [Pa] | Sättigungsdampfdruck |
| p_s | [Pa] | Sättigungsdampfdruck über einer Lösung mit einer ebenen Oberfläche |
| S | [-] | Übersättigung |
| S_{krit} | [-] | kritische Übersättigung |
| t | [s] | Zeit |
| T | [K] | Temperatur |
| v | [m · s ⁻¹] | Geschwindigkeit des Teilstroms |
| v | [m · s ⁻¹] | Vorschubgeschwindigkeit des Kolbens |
| v_m | [m ³ · mol ⁻¹] | molares Volumen |
| V | [m ³] | Volumen |
| \dot{V} | [m ³ · s ⁻¹] | Volumenstrom |
| V_M | [m ³] | Meßvolumen |
| w | [m · s ⁻¹] | Geschwindigkeit des Hauptstroms |

Griechische Buchstaben

| Formelzeichen | Einheit | Physikalische Größe |
|----------------------|-------------------------|--------------------------------------|
| α | [-] | dimensionslose Teilchengröße |
| ϕ | [°] | Polarisationswinkel |
| λ | [m] | Wellenlänge |
| θ | [°] | Streuwinkel |
| ρ | [kg · m ⁻³] | Dichte |
| ρ_s | [kg · m ⁻³] | mittlere Stopfdichte des Feststoffes |
| σ | [N · m ⁻¹] | Oberflächenspannung |
| σ | [-] | Standardabweichung |
| σ_g | [-] | Geometrische Standardabweichung |
| τ | [s] | Dauer der Koagulation |
| φ | [%] | relative Feuchte |

Abkürzungen

| | |
|----------|---|
| DESAGA | Gasprobenehmer von der Firma DESAGA GmbH [22] |
| PCS | Particle Counting Sizer |
| RBG 1000 | durch Hersteller [18] festgelegte Abkürzung für Feststoffdispergierer |
| VDI | Verein Deutscher Ingenieure |
| VKL-10 | durch Hersteller [25] festgelegte Abkürzung für Verdünnungssysteme |

1 Einleitung und Zielsetzung

1.1 Aerosolproblematik

Die Entstehung von Aerosolen bereitet in der industriellen Prozeßtechnik oft erhebliche Probleme. Als Beispiel bilden sich in chemischen Reaktoren oder in Verbrennungsanlagen für Haus- und Sondermüll häufig unerwünschte gas- und partikelförmige Schadstoffe wie saure Gase, polyzyklische Aromaten, Ruß und Flugaschen. Aufgrund ihrer thermodynamischen Eigenschaften neigen einige dieser Schadstoffe zur Aerosolbildung, d.h. sie liegen teils gasförmig, teils an Partikeln gebunden.

Der gasförmige Teil dieser Schadstoffe und der am Feinstaub adsorbierte Teil gelangt in nachfolgende Prozeßstufen bzw. Rauchgasreinigungskomponenten, in denen sich die Schadstoffe anreichern können. Die Rauchgasreinigungsstrecke wird dadurch in unnötiger Weise mit Reststoffen belastet. Dadurch werden diese Komponenten selbst zu Schadstoffquellen [1].

Die Rückhaltung der sehr feinen Partikeln erfordert meistens aufwendige und kostenintensive zusätzliche Maßnahmen, um den Emissionsgrenzwert einzuhalten. Vielmehr wird es angestrebt, die Bildung von Feinstäuben und gasförmigen Schadstoffen so gering wie möglich zu halten und diese in eine leicht filtrierbare grobkörnige Staubfraktion einzubinden. Dazu ist ein grundlegendes Verständnis des Aerosolverhaltens erforderlich.

Im Forschungszentrum Karlsruhe wird zur Zeit ein Rechenmodell entwickelt, mit dessen Hilfe sich das Aerosolverhalten in den Komponenten von Rauchgasreinigungssystemen vorausberechnen läßt. Die Voraussagen des Modells werden mit verfügbaren Literaturdaten und mit eigenen experimentellen Ergebnissen verglichen. Durch dieses Vorgehen kann das Modell stufenweise verifiziert werden und daraus lassen sich letztendlich Vorschläge für eine optimierte Aerosolabscheidung ableiten [1].

1.2 Ziel der Arbeit

In den vorherigen Arbeiten im FZ-KA wurde bereits das Wachstum von Natriumsulfatpartikeln durch Aufnahme von Wasserdampf untersucht [17]. Die Ergebnisse der Experimente wurden mit dem Rechenmodell nachgerechnet und es zeigte zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen den experimentellen und mit dem Rechenmodell berechneten Ergebnissen. Diese Untersuchung diente als eine erste Näherung, um das Wachstum von Salzaerosolen im feuchten Zustand darzustellen.

In der vorliegenden Arbeit sollen detaillierte Erkenntnisse über die Auswirkungen der Erhöhung der relativen Feuchte auf das Partikelwachstum und Partikelgrößenverteilung von Flugaschepartikeln untersucht werden. Da die TAMARA-Flugasche große Salzanteile in ihrer Zusammensetzung aufweist, wird ein ähnliches vergleichbares Ergebnis wie bei der Untersuchung mit Natriumsulfat erwartet.

Dazu wurde die gesichtete TAMARA-Flugasche mit einem Staubdosierer in den Mischreaktor aufgegeben. Die Messungen wurden mit Luft als Trägergas durchgeführt. Um die relative Feuchte der Luftströmung zu erhöhen, wird ein befeuchteter partikelfreier Luftstrom eingeleitet. So kann der Einfluß der relativen Feuchte auf die Flugstaubspartikel durch Messen ihres Größenwachstums festgestellt werden.

Zur Messung der Partikelgrößenverteilung steht für den Meßbereich 0,3 bis 20 μm ein Streulichtanalysator (PCS 2000) zur Verfügung. Im Verlauf der Arbeit wurde notwendigerweise ein Rasterelektronenmikroskop (REM) eingesetzt. Es dient als Vergleich für die Bestimmung des Modalwertes der Flugaschegrößenverteilung im Trockenzustand.

Im Rahmen dieser Arbeit werden weiterhin die Meßprinzipien und die möglichen Meßfehler des Streulichtmeßverfahrens erläutert. Als besonders wichtige Frage ist dabei der Einfluß des Brechungsindex und der Form des untersuchten Stoffes auf das Ergebnis einer Streulicht-Partikelgrößen-Zählanalyse.

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden somit folgende Teilaufgaben bearbeitet:

- Aufbau der Versuchsanlage
- Kalibrierung des Streulichtanalysators PCS 2000
- Versuchsvorbereitende Messungen
- Messen des Partikelgrößenwachstums der gesichteten TAMARA-Flugaschepartikeln durch Kondensation bei verschiedenen Massenkonzentration (50 mg/m^3 , 200 mg/m^3 , 500 mg/m^3)
- Literarische Untersuchung über den Einfluß der Form und des Brechungsindex der Partikel auf das Ergebnis eines Streulichtmeßverfahrens
- Diskussion der Meßergebnisse

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Aerosole

2.1.1 Aerosoldefinition

Unter einem Aerosol versteht man in erster Näherung die in der Luft suspendierten Teilchen in flüssiger oder fester Phase, die eine so geringe Sinkgeschwindigkeit aufweisen, daß kleinste Turbulenzen ausreichen, um sie im luftgetragenen Zustand zu belassen [6]. Das Aerosol betrachtet man heute als disperses System, gebildet aus festen oder flüssigen Partikeln, die in einem Trägergas fein verteilt sind [3].

Der Größenbereich von Aerosolteilchen erstreckt sich von 1 nm bis 10 µm. Im überwiegenden Teil der Literatur wird die Grenze sogar bis 100 µm ausgedehnt. Die Anzahlkonzentration der Aerosolpartikeln liegt zwischen 1 und 10^{10} Partikeln/cm³.

2.1.2 Aerosolklassen

Nach dem Entstehungsprozeß unterscheidet man hauptsächlich drei Aerosolarten [3]:

- **Kondensationsaerosole** entstehen, wenn der Taupunkt eines Gas-Dampf-Gemisches unterschritten wird und die dampfförmigen Komponenten kondensieren. Das bekannteste Beispiel hierfür ist die atmosphärische Nebel- oder Wolkenbildung. Auch bei der feinen Zerstäubung von Flüssigkeiten wird Nebel erzeugt.

- **Sublimationsaerosole** bilden sich, wenn der Sublimationspunkt eines Gas-Dampf-Gemisches unterschritten wird, und dabei die dampfförmigen Komponenten teilweise desublimieren; also, direkt von der Gasphase in die feste Phase übergehen. Solche Desublimationsvorgänge treten auf, wenn heiße Gase abgekühlt werden, die Dämpfe schwerflüchtiger Komponenten enthalten (Feststoffnebel, Rauch).

- **Reaktionsaerosole** entstehen, wenn Gaskomponenten chemisch reagieren und sich dabei ein schwerflüchtiges Reaktionsprodukt – meist ein Salz – bildet. So führt die Reaktion von Ammoniak und Chlorwasserstoff zur Bildung von NH_4Cl -Reaktionsaerosolen. Die unvollständige Verbrennung von fossilen Brennstoffen erzeugt Rauch. Im Abgas von Kohlekraftwerke befinden sich Flugasche und Ruß.

2.1.3 Teilaspekte der Aerosolbildung

Bild 1 zeigt die drei Teilaspekte der Aerosolbildung durch Phasenübergänge [3].

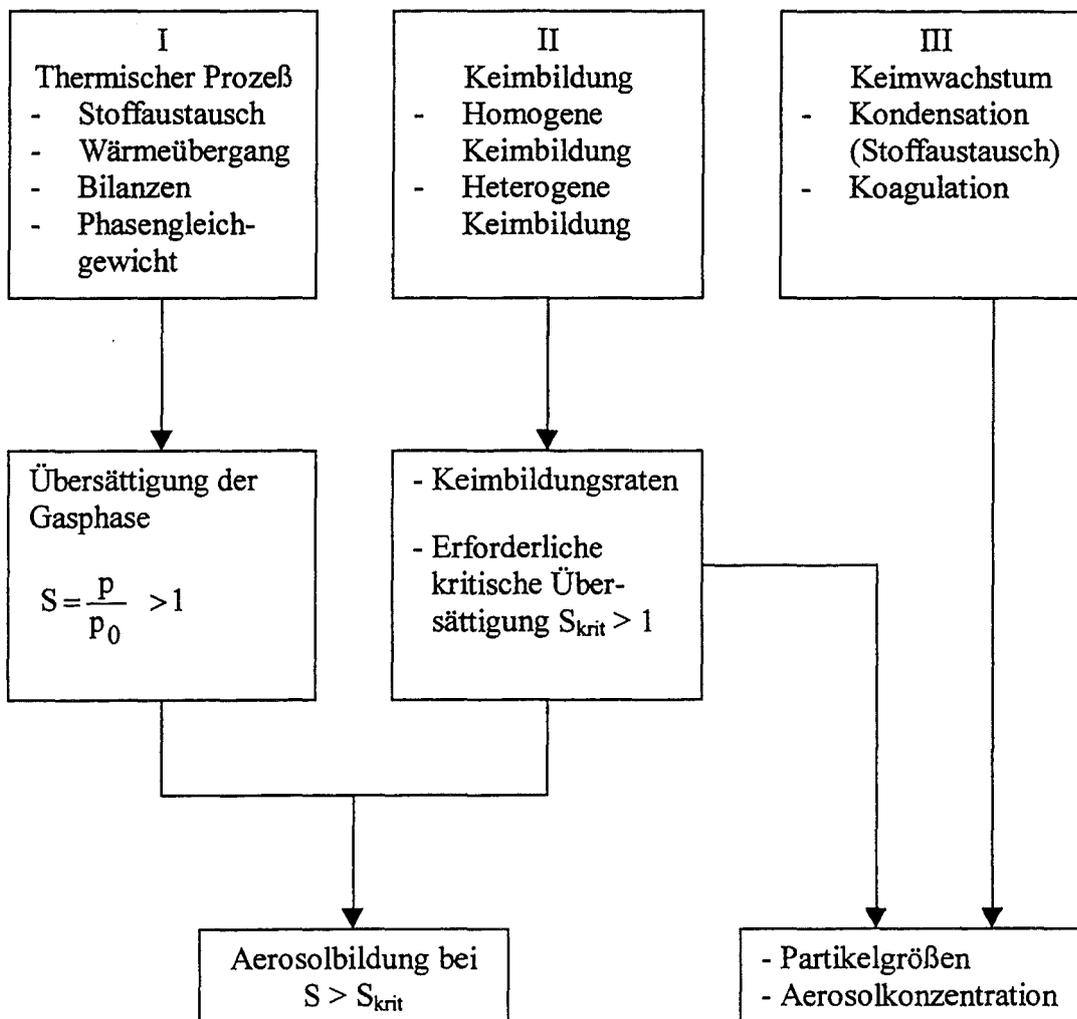


Bild 1. Teilaspekte der Aerosolbildung

Der erste Aspekt ist der thermische Prozeß. Durch Wärme- und Stoffaustausch entsteht eine Übersättigung S der Gasphase gegenüber dem Phasengleichgewicht. Der Übersättigungsgrad ist definiert als das Verhältnis aus der aktuellen Partialdrucksumme der kondensierbaren Komponenten p und dem entsprechenden Wert des Phasengleichgewichts. Damit es bei Unterschreitung des Taupunktes zur Keimbildung kommt, muß der Übersättigungsgrad S größer als der kritische Wert S_{krit} sein.

Der zweite Teilaspekt ist die Keimbildung. Sie muß betrachtet werden, um S_{krit} ermitteln zu können. Man unterscheidet zwei Arten der Keimbildung. Erfolgt die Keimbildung ausschließlich durch Zusammenlagerung von Molekülen der kondensierbaren Komponenten, spricht man von **homogener Keimbildung**. **Heterogener Keimbildung** findet statt, wenn im Gas Fremdkeime in Form feiner Partikeln (Stäube, Salze) vorhanden sind, auf denen die kondensierbaren Komponenten Keime bilden können. Die zur Kondensation notwendige Übersättigung liegt wesentlich niedriger als im Fall der homogenen Keimbildung.

Der Vorgang der heterogenen Keimbildung an den Partikeln hängt im wesentlichen von der Größe, der Form, der Stoffart, der Oberflächenstruktur der Partikeln und somit den physikalischen und chemischen Wechselwirkungen zwischen Partikel und Dampf [4].

Der dritte Aspekt befaßt sich mit dem Keimwachstum. Man unterscheidet das Wachstum durch Kondensation von dem durch Koagulation. Bei der Kondensation ist die treibende Kraft das Konzentrationsgefälle von Gas-Dampf-Phase und Kondensationskeim. Unter Wachstum durch Koagulation versteht man die Zusammenlagerung von Keimen bzw. Partikeln.

2.1.4 Elementare Merkmale der Aerosole

Aerosole als disperse Systeme werden durch einige elementare Merkmale gekennzeichnet. Ein einzelnes individuelles Aerosolteilchen wird durch die drei Merkmale – Form, Größe und Substanz – beschrieben.

Die Beschreibung eines Aerosols als Ansammlung vieler Einzelteilchen (Partikelkollektiv) wird durch zwei weitere Eigenschaften – Konzentration und Partikelgrößenverteilung – ergänzt. Zur vollständigen Beschreibung eines Aerosols als disperses System benötigt man ferner die Materialeigenschaften des Dispersionsmittels, was in der Regel die atmosphärische Luft sein wird [6].

2.2 Partikelwachstum

2.2.1 Partikelwachstum durch Koagulation

Als Koagulation bezeichnet man das Zusammenstoßen und Aneinanderhaften von Partikeln. Koagulation äußert sich in einer Abnahme der Partikelanzahlkonzentration bei konstanter Massenkonzentration [5]. Bei der Koagulation handelt es sich um einen zeitabhängigen Prozeß. Die Koagulationsgeschwindigkeit ist abhängig von der Eigenschaft der koagulierenden Teilchen und des Gases. Für ein monodisperses Aerosol (Partikel gleicher Größe) läßt sich die Auswirkung der Koagulation nach dem folgenden einfachen Ansatz abschätzen:

$$\frac{N}{N_0} = \frac{1}{1 + K \cdot N_0 \cdot \tau} \quad (2.1)$$

N_0 und N sind die Anzahlkonzentrationen vor bzw. τ Sekunden nach der Koagulation und K ist die Koagulationskonstante. Wenn die Abmessung der Partikel groß im Vergleich zur freien Weglänge der umgebenden Gasmoleküle (ca. $0,12 \mu\text{m}$ bei $p=1 \text{ bar}$ und 25° C ; $K_N \leq 1$) ist, läßt sich die Koagulationskonstante K mit folgender Gleichung berechnen [3]:

$$K = 4 \cdot \pi \cdot D_p \cdot D \quad (2.2)$$

Darin ist D_p der Partikeldurchmesser und D der Diffusionskoeffizient der Partikel.

Tabelle 1. Diffusionskonstante (D) in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers (D_p) [5]

| D_p in μm | 0,1 | 0,2 | 0,3 | 0,5 | 0,7 | 1,0 |
|-------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| D in cm^2/s | $6,21 \cdot 10^{-6}$ | $2,14 \cdot 10^{-6}$ | $1,22 \cdot 10^{-6}$ | $6,26 \cdot 10^{-7}$ | $4,16 \cdot 10^{-7}$ | $2,75 \cdot 10^{-7}$ |

Im Bild 2 ist die Abnahme der Partikelanzahlkonzentration durch Koagulation für drei verschiedene Partikeldurchmesser gemäß Gl. (2.1) aufgetragen. Weiterhin sieht man, daß die Koagulation von Aerosolen bei einer Konzentration im Bereich 10^6 bei Verweilzeit bis 10 Sekunden nur eine untergeordnete Rolle spielt.

Bild 3 zeigt die Abnahme der Partikelanzahlkonzentration durch Koagulation für den Partikeldurchmesser von $0,5 \mu\text{m}$ bei drei verschiedenen Partikelanzahlkonzentrationen (N_0). Werden bei der Aerosolgenerierung mehr als 10^8 Partikeln pro cm^3 erzeugt, verringert sich diese Konzentration sehr schnell. Die obere Grenze für die Anzahlkonzentration von submikronen Aerosolen in technischen Prozessen mit Verweilzeiten im Sekundenbereich liegt deshalb bei ca. 10^8 Partikeln/ cm^3 [3].

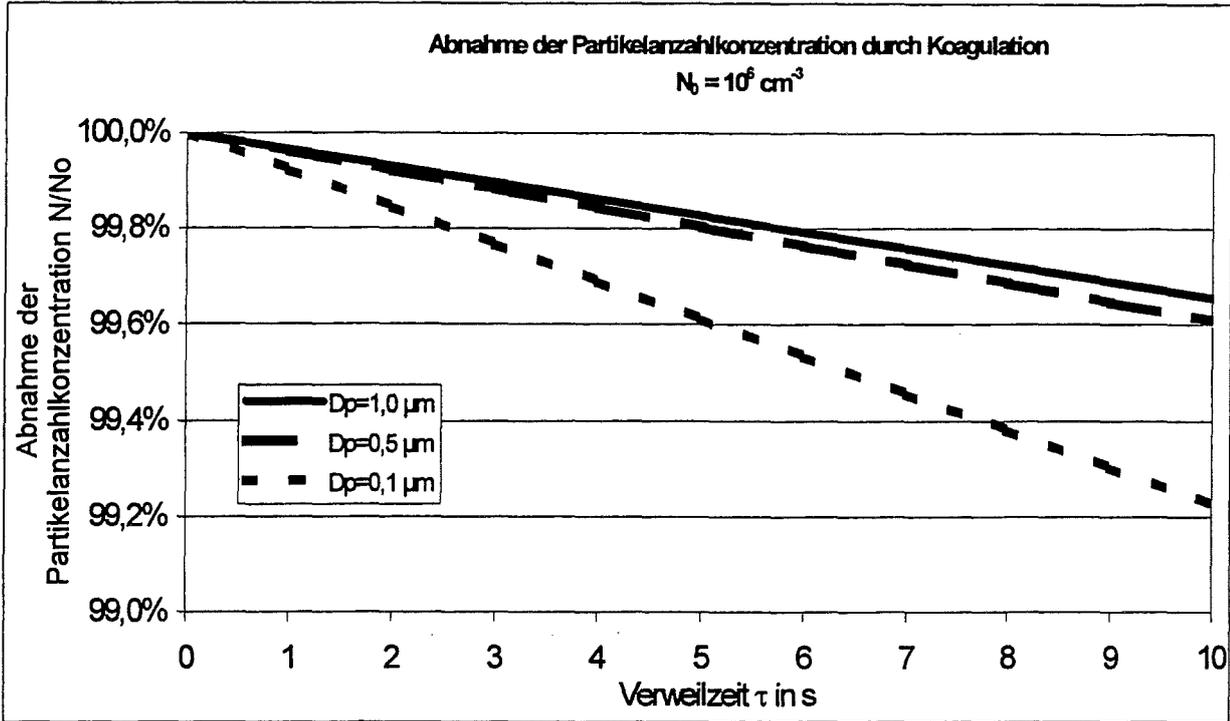


Bild 2. Die Abnahme der Partikelanzahlkonzentration durch Koagulation bei verschiedenen Durchmessern

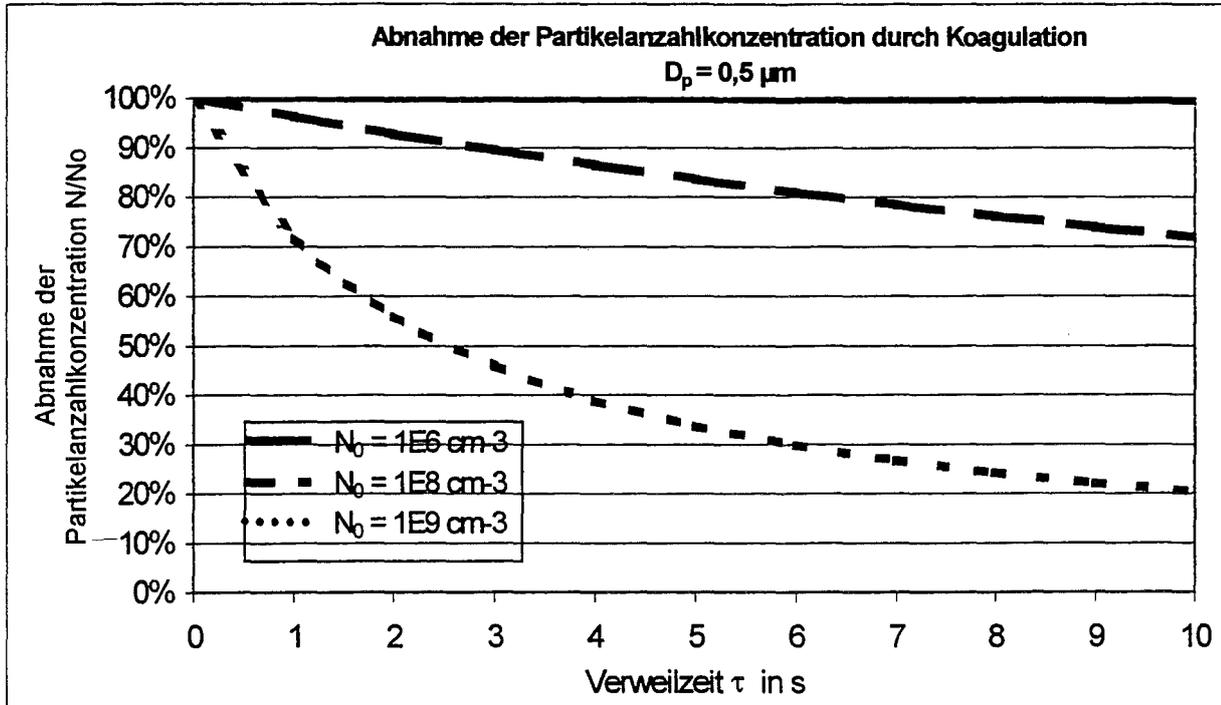


Bild 3. Auswirkung der Koagulation für den Durchmesser $D_p = 0,5 \mu\text{m}$ bei verschiedenen Partikelanzahlkonzentrationen

2.2.2 Partikelwachstum durch Kondensation

Die Kondensation ist der bestimmende Mechanismus beim Wachstum von Aerosolen. Die treibende Kraft dabei ist das Konzentrationsgefälle zwischen der Gasphase und der Aerosolpartikel. Die Kondensation erfolgt diffusionskontrolliert, wenn die Abmessung der Partikel groß im Vergleich zur freien Weglänge der umgebenden Gasmoleküle (ca. $0,12 \mu\text{m}$ bei $p=1 \text{ bar}$ und 25°C ; $K_N \leq 1$) ist. Dieser Bereich wird als hydrodynamischer Bereich bezeichnet. Das Medium um das Partikelchen kann somit als Kontinuum angesehen werden [4].

Sehr interessant zu betrachten ist hier das Wachstum von hygrokopischen Aerosolen (z.B. Salzaerosole) in feuchter Luft. Sie verändern ihren Durchmesser in Abhängigkeit der relativen Feuchte des Trägergases durch Wasserdampfkondensation.

Das Partikelwachstum durch Wasserdampfkondensation ist proportional der Differenz zwischen der Wasserdampfpartialdrücke im Innern der Gasphase und dem Dampfdruck an der Oberfläche eines Salztropfens. Die Beziehung des Dampfdruckes an der Oberfläche eines Salztropfens (p_d) zur Größe des Tropfens (D_p) wird durch die bekannte Kelvin-Gleichung gegeben [3]:

$$\frac{p_d}{p_s} = e^{\left(\frac{4 \cdot \sigma \cdot v_m}{R \cdot T \cdot D_p} \right)} \quad (2.3)$$

Dabei sind p_s der Sättigungsdampfdruck über einer Lösung mit einer ebenen Oberfläche, v_m das partielle molare Volumen von Wasser im Gemisch, σ die Oberflächenspannung, R die allgemeine Gaskonstante und T die absolute Temperatur. Aus dieser Gleichung ist sofort zu erkennen, daß das Verhältnis der Dampfdrücke nur vom Durchmesser D_p abhängt, wenn alle übrige Variablen konstant wären. Wollte man jedoch die Gleichung (2.3) exakt auswerten, um das Wachstum von Salzpartikeln in feuchter Umgebung zu beschreiben, muß man einige Aspekte betrachten, die Auswirkungen auf die Lösung der Gleichung (2.3) haben. In [4] sind u.a. folgende Aspekte beschrieben worden:

- Einfluß der Konzentration des gelösten Stoffes auf das Wachstumsverhalten eines Tropfens,
- Abhängigkeit der Oberflächenspannung von Konzentration des gelösten Stoffes,

- Einfluß der Oberflächenkrümmung auf die Änderung des Sättigungsdruckes über der Tropfenoberfläche,
- Abhängigkeit der Dichte der Lösung, des partiellen molaren Volumens des Lösungsmittels von Konzentration des gelösten Stoffes,
- Einfluß der Elektrolytät der Lösung.

In der Literatur gilt die **Konzentration** des gelösten Salzes in der Lösung als besondere **Haupt-einflußgröße** auf das Wachstumsverhalten eines salzhaltigen Tropfens. Es ist ein deutlicher Unterschied zu erkennen beim Wachstum eines reinen Wassertropfens gegenüber dem des salzhaltigen Tropfens. Der Salzgehalt in der Lösung verursacht eine **Dampfdruckerniedrigung** über der Lösungsoberfläche des Tropfens [4].

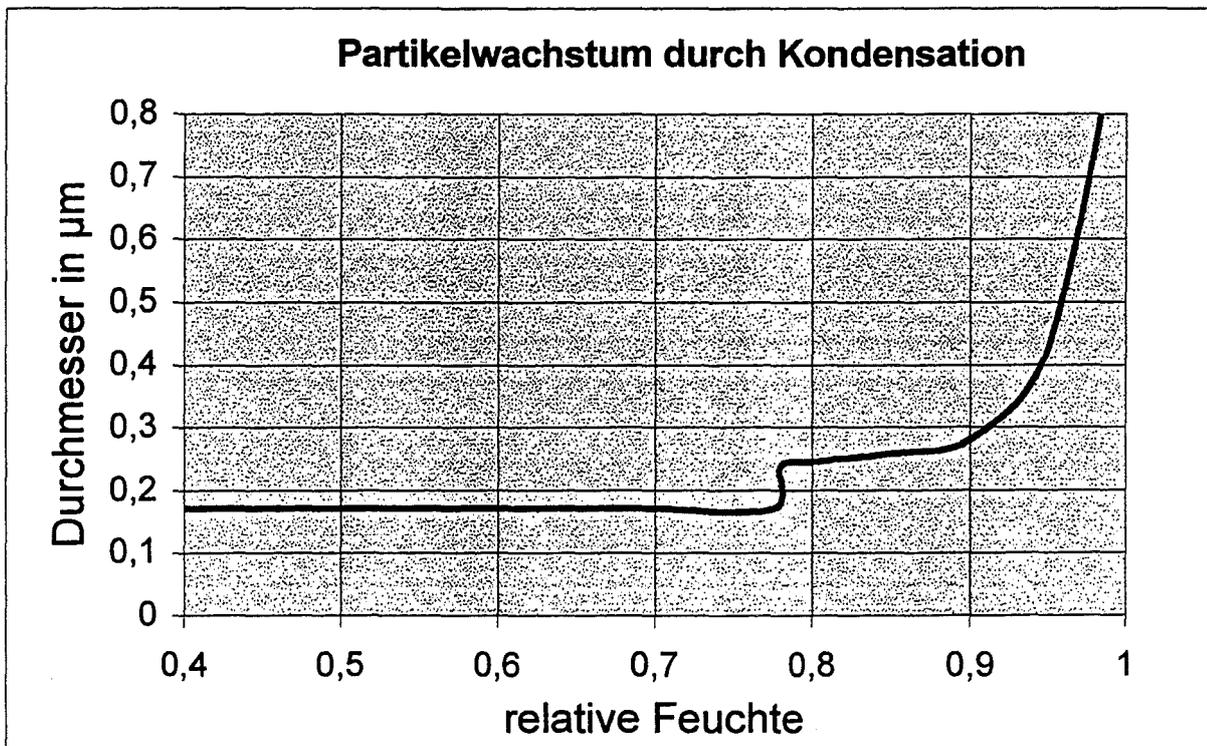


Bild 4a. Abhängigkeit des Durchmessers einer NH_4Cl -Partikel von der relativen Feuchte bei Raumtemperatur

Das Wachstum von Salzaerosolen in feuchter Luft zeigt Bild 4 am Beispiel einer NH_4Cl -Partikel mit einem Anfangsdurchmesser von ca. 0,17 μm . Die vollständige Gleichung zu diesem Bild ist in [3] zu finden. Sie ist eine Erweiterung der Kelvin-Gleichung (2.3) unter Berücksichtigung der u.a. oben genannten Aspekte. Anhand dieses Bildes läßt sich das Partikelwachstum der Salzaerosole in feuchter Umgebung wie folgt beschreiben:

Bis zu einer relativen Feuchte von ca. 0,75 adsorbieren die Salzpartikeln nach und nach Wasserdampfmoleküle, ohne sich dabei ihre Durchmesser zu vergrößern. Die Wasserdampfmoleküle diffundieren in das Innere des Partikels bis zu einer maximalen Adsorptionsfähigkeit des Salzpartikels. Das Teilchen bleibt bis dahin immer noch im festen Zustand.

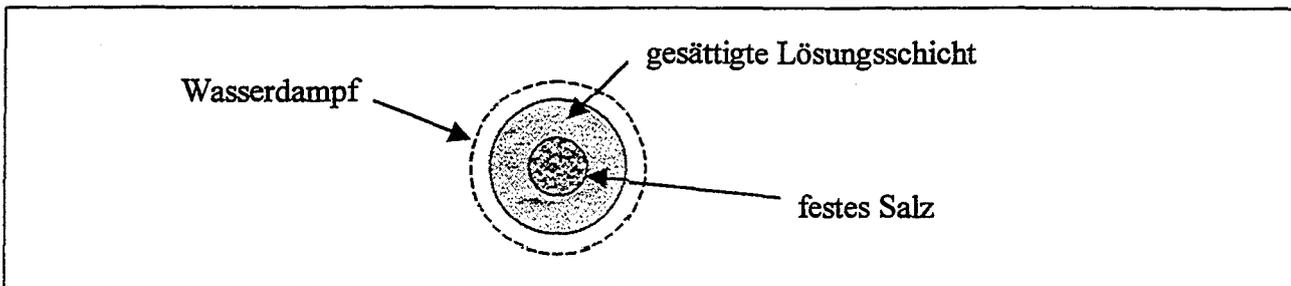


Bild 4b. Darstellung der Salzpartikel am Zerfließpunkt

Bei weiterer Zunahme der relativen Feuchte kondensiert Wasserdampf an der Oberfläche der Aerosolpartikel. Das Wasserkondensat löst das feste Salzkorn auf und es bildet eine gesättigte Lösungsschicht an der Oberfläche des Salzpartikels. An diesem Punkt existieren drei Phasen, die im Gleichgewicht stehen: festes Salz, Salzlösung und Wasserdampf. Dies bedeutet, daß hier die maximale Salzkonzentration vorliegt und somit der Dampfdruck über dem Salztropfen relativ niedrig ist. Diesen Punkt nennt man Zerfließ- oder Löslichkeitspunkt und wird durch eine sprunghafte Vergrößerung des Partikeldurchmessers gekennzeichnet. Nach dem Phasenübergang ist die feste Phase verschwunden und der Wasserdampf steht mit der Salzlösung im Gleichgewicht.

Das System befindet sich im Gleichgewicht, wenn der Wasserdampfpartialdruck in der Gasphase mit dem Dampfdruck bzw. Sättigungsdruck über dem Salztropfen identisch ist. Wird die relative Feuchte in der Gasphase nach dem Zerfließpunkt weiter erhöht, erhöht sich, gleichbleibende Temperatur vorausgesetzt, auch der Wasserdampfpartialdruck. Das System ist jetzt nicht mehr im Gleichgewicht. Durch den Druckunterschied zwischen Wasserdampfpartialdruck in der Gasphase und Dampfdruck über der Salzlösung kommt es zur Kondensation des Wasserdampfes auf der Tropfenoberfläche. Dadurch wird die Salzlösung weiter verdünnt, wodurch ihr Dampfdruck ansteigt. Dies geschieht so lange, bis die Salzlösung soweit verdünnt ist, daß ihr Dampfdruck den Wert des Wasserdampfpartialdrucks der Gasphase erreicht.

3 Experimenteller Teil

3.1 Versuchsanlage

3.1.1 Beschreibung des Versuchsaufbaus

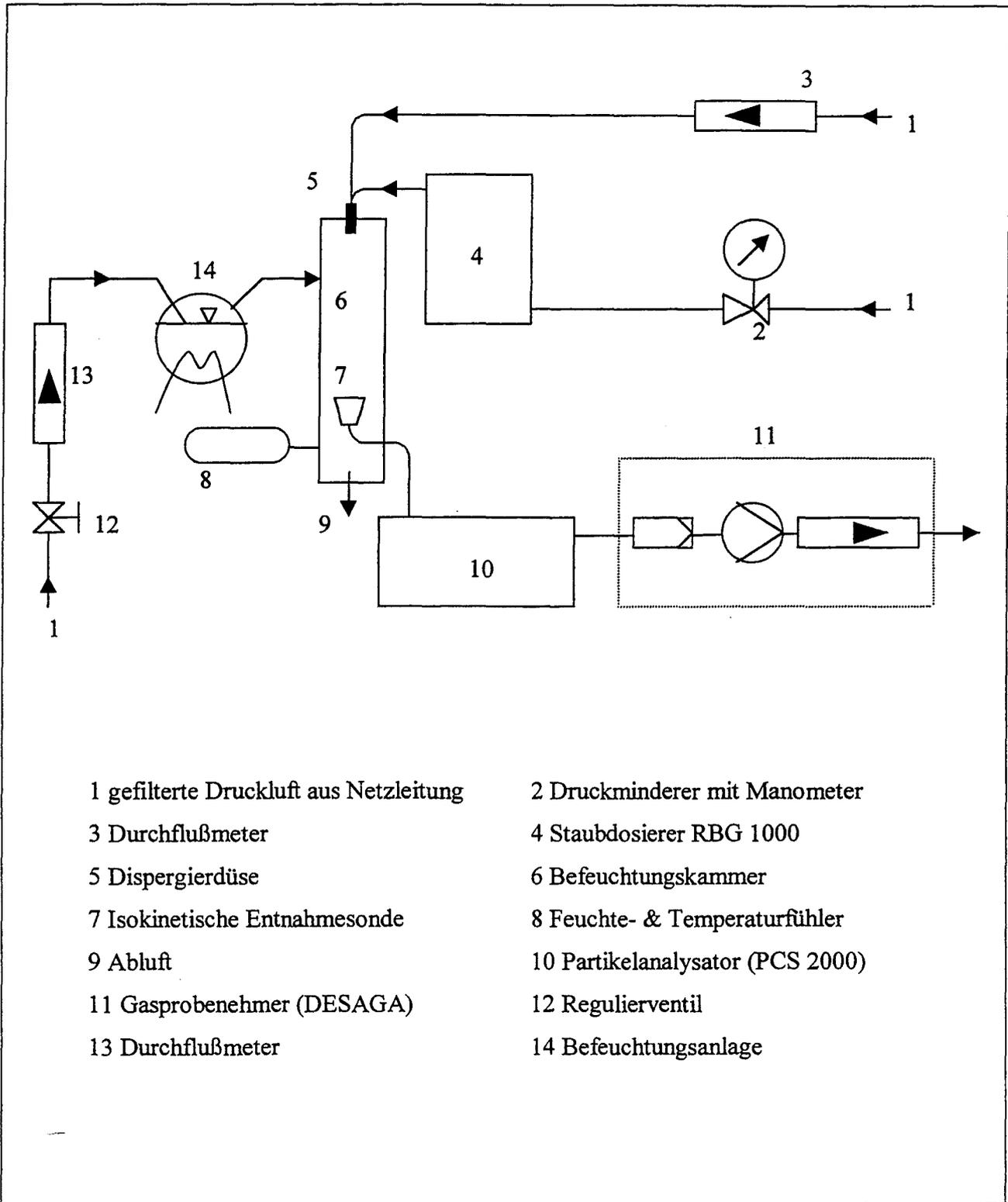
Bild 5 zeigt das Schema der Versuchsanlage zur Messung des Wachstums von Flugaschepartikeln in feuchter Umgebung. Für die Dispergierung der Flugasche wurde ein Staubdosierer RBG 1000 der Firma Palas verwendet. Hierzu wurde die in einen zylindrischen Behälter eingefüllte und verdichtete Flugasche mit Hilfe eines Kolbens einer rotierenden Bürste zugeführt. Ein Volumenstrom der aus Netzleitung gefilterten Versorgungsluft überstreicht die Bürste und reißt die in der Bürste enthaltenen Feststoffteilchen mit [19].

Der partikelbeladene Gasstrom gelangt über einen Schlauch in eine mit Luft angetriebene Dispergierdüse, mit deren Hilfe eine gleichmäßige Dispergierung der Partikeln über die Mischkammer erreicht werden soll. Dieser Zustand ist der Ausgangspunkt für Messungen in trockenem und feuchtem Zustand.

Im Fall der Messungen im trockenen Zustand strömt der partikelhaltige Gasstrom mit sehr niedriger relativer Feuchte bis zur Probennahmesonde weiter. Dort wird ein Teilstrom der Gasströmung isokinetisch entnommen und in einen Partikelanalysator geleitet. Die isokinetische Probenahme ist notwendig, um eine gleichmäßige und von der Partikelgröße unabhängige und repräsentative Probenahme sicherzustellen [5].

Bei den Messungen im feuchten Zustand wird der Gasstrom nach dem Verlassen der Düse durch Zugabe gesättigter partikelfreier Luft befeuchtet. Der befeuchtete partikelhaltige Gasstrom verbleibt ca. 11 Sekunden in der Wachstumsstrecke. Ein Teilstrom des Gases wird mit der Probennahmesonde isokinetisch entnommen. Mit Hilfe des Streulichtmeßgeräts PCS 2000 werden die Anzahlkonzentration und Partikelgrößenverteilung bestimmt.

Um eine Aussage über den Einfluß der relativen Feuchte auf das Wachstum von Flugaschepartikeln zu ermöglichen, wurde die relative Feuchte stufenweise erhöht. Durch das Vergleichen der Meßergebnisse im trockenen und feuchten Zustand konnte dieser Einfluß untersucht werden.



- | | |
|--|----------------------------------|
| 1 gefilterte Druckluft aus Netzleitung | 2 Druckminderer mit Manometer |
| 3 Durchflußmeter | 4 Staubdosierer RBG 1000 |
| 5 Dispergierdüse | 6 Befeuchtungskammer |
| 7 Isokinetische Entnahmesonde | 8 Feuchte- & Temperaturfühler |
| 9 Abluft | 10 Partikelanalysator (PCS 2000) |
| 11 Gasprobennehmer (DESAGA) | 12 Regulierventil |
| 13 Durchflußmeter | 14 Befeuchtungsanlage |

Bild 5. Versuchsaufbau

3.1.2 Beschreibung der verwendeten Komponenten

3.1.2.1 Befeuchtungskammer

Bild 9 zeigt den wesentlichen Aufbau des Befeuchtungskammers für die Untersuchung des Wachstums von Flugaschepartikeln in feuchter Umgebung.

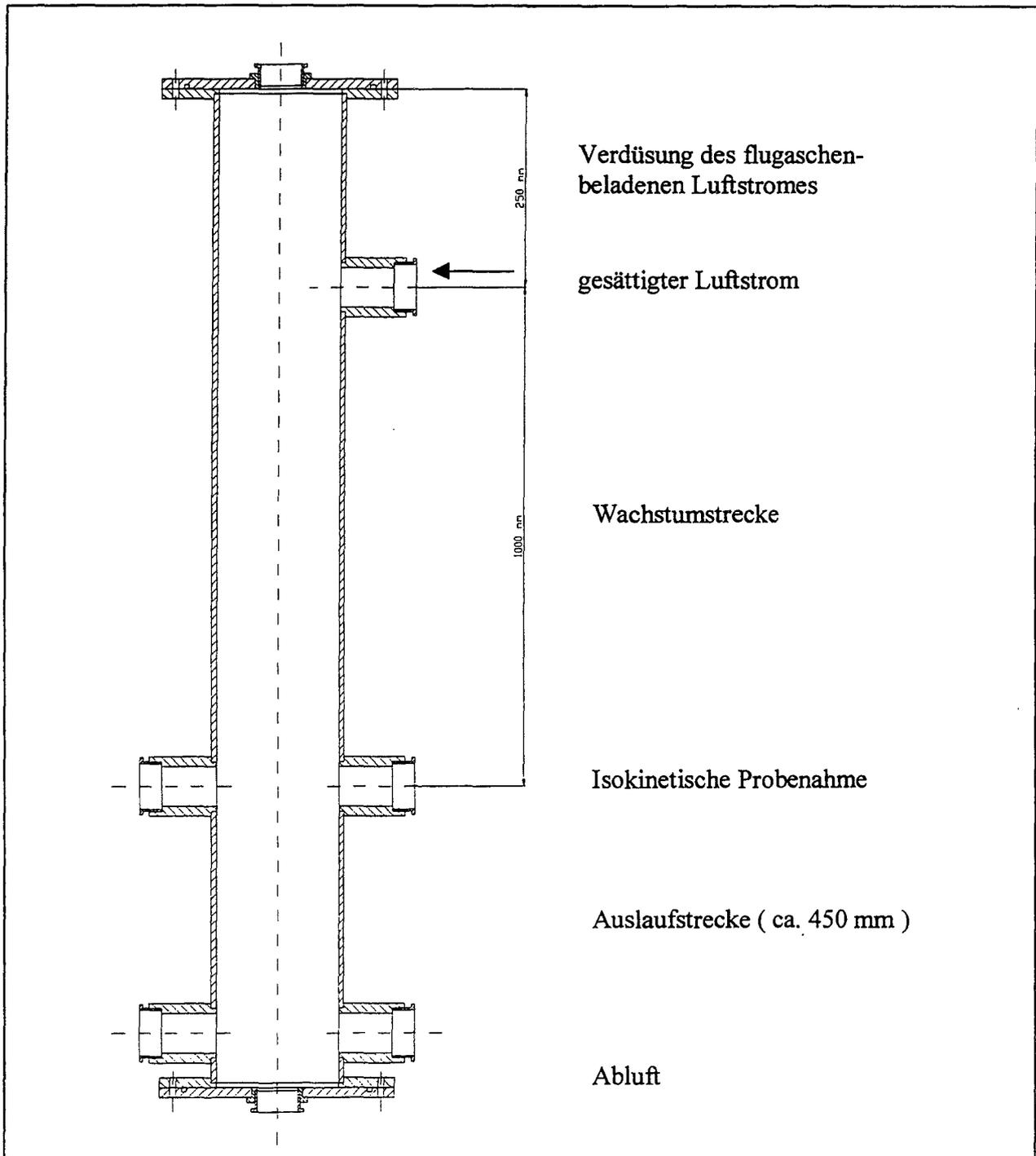


Bild 6. Befeuchtungskammer

Der Befeuchtungskammer besteht aus einem Plexiglasrohr mit einem Innendurchmesser von 140 mm. An seinem oberen Deckel ist die Dispergierdüse eingebaut, die für eine gleichmäßige Dispergierung der Partikeln über die Mischkammer dienen sollte. Die Verdüsungsstrecke hat eine Länge von 250 mm.

Nach der Verdüsungsstrecke ist ein Anschlußflansch eingebaut. Hier wird der gesättigte Luftstrom für die Befeuchtung eingeleitet. Anschließend folgt die Wachstumstrecke mit einer Länge von 1000 mm. In dieser Strecke soll das Wachstum von Flugaschepartikeln in feuchter Umgebung stattfinden. Bei einem Gesamtvolumenstrom von ca. $5 \text{ m}_N^3/\text{h}$ beträgt die Aufenthaltszeit in dieser Strecke ca. 11 Sekunden.

Nach der Wachstumstrecke erfolgt die Probenahme. Mit Hilfe einer Sonde wurde ein Teilstrom des flugaschenbeladenen Gasstromes isokinetisch entnommen. Die isokinetische Probenahme ist notwendig, um eine gleichmäßige und von der Partikelgröße unabhängige und repräsentative Probenahme sicherzustellen. Die VDI-Richtlinie 2066 [48] legt für die Anordnung der Meßstelle folgende Randbedingungen fest:

- in gerader Strömungstrecke
- besser vertikal als horizontal
- gleichbleibende Form des Kanals
- gleichbleibender Querschnitt des Kanals
- Einlaufstrecke länger als Auslaufstrecke
- keine Drallströmung.

Zur Förderung des Gasprobenstromes bis zum Partikelanalysator wurde ein Gasprobenehmer der Firma DESAGA eingesetzt (siehe Bild 5). Die Messung der relativen Feuchte und der Temperatur in der Befeuchtungskammer findet gegenüber der Entnahmesonde statt. Für diesen Zweck wurden zwei Anschlußflansche eingebaut.

Nach der Probenahme verläßt der Gasstrom über eine Auslaufstrecke (ca. 450 mm) die Befeuchtungskammer und wird dem Abluftreiniger zugeführt. Dort erfolgt die Reinigung der Abluft von Restpartikeln.

Betriebsdaten des Befeuchtungskammer

Der Gesamtvolumenstrom im Befeuchtungskammer setzt sich hauptsächlich aus dem für die Erzeugung der Aerosole benötigten Volumenstrom und dem der mit Luft angetriebenen Dispergierdüse zusammen. Er beträgt in den meisten Messungen ca. $5 \text{ m}_N^3/\text{h}$.

Der Luftvolumenstrom des Staubdosierers RBG 1000 wurde durch eine Volumenstromkurve ermittelt, der von Dispergierdüse wurde mit einem Durchflußmesser gemessen. In der Tabelle 2 sind die Betriebsdaten des Befeuchtungskammers zusammengefaßt.

Tabelle 2. Betriebsdaten des Befeuchtungskammers

| <i>Benennung</i> | <i>Einheit</i> | |
|--|--------------------------------------|-------|
| <i>Betriebsbedingungen</i> | | |
| Volumenstrom der Luft | $[\text{m}_N^3 \cdot \text{h}^{-1}]$ | 5 |
| Gasgeschwindigkeit | $[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$ | 0,09 |
| Dichte der Flugasche | $[\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}]$ | 0,764 |
| Berechneter Massenstrom vom Staubdosierer 1 | $[\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}]$ | 250 |
| Berechneter Massenstrom vom Staubdosierer 2 | $[\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}]$ | 1000 |
| Berechneter Massenstrom vom Staubdosierer 3 | $[\text{mg} \cdot \text{h}^{-1}]$ | 2500 |
| Berechnete Massenkonzentration der Flugasche 1 | $[\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}]$ | 50 |
| Berechnete Massenkonzentration der Flugasche 2 | $[\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}]$ | 200 |
| Berechnete Massenkonzentration der Flugasche 3 | $[\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}]$ | 500 |
| <i>Aufenthaltszeiten</i> | | |
| Verdüngsstrecke (Länge 250 mm) | [s] | 2,7 |
| Wachstumsstrecke (Länge 1000 mm) | [s] | 11 |
| Auslaufstrecke (Länge ca. 450 mm) | [s] | 5 |

3.1.2.2 Aerosolerzeugung mit dem Feststoffdispergierer RBG 1000

Der Feststoffdosierer RBG 100 eignet sich zu Herstellung von polydispersen Feststoffaerosolen aus Haufwerken. Mit dem Gerät werden trockene, nicht kohäsive Pulver und Stäube als Einzelpartikel in den luftgetragenen Zustand überführt. Das Gerät ermöglicht eine exakte Dosierung von Feststoffen (auch im Bereich mg/h) und die Feindispergierung von Pulvern in der Trockenphase [18]. Im Bild 7 ist das Funktionsschema des Bürstendosierers gezeigt.

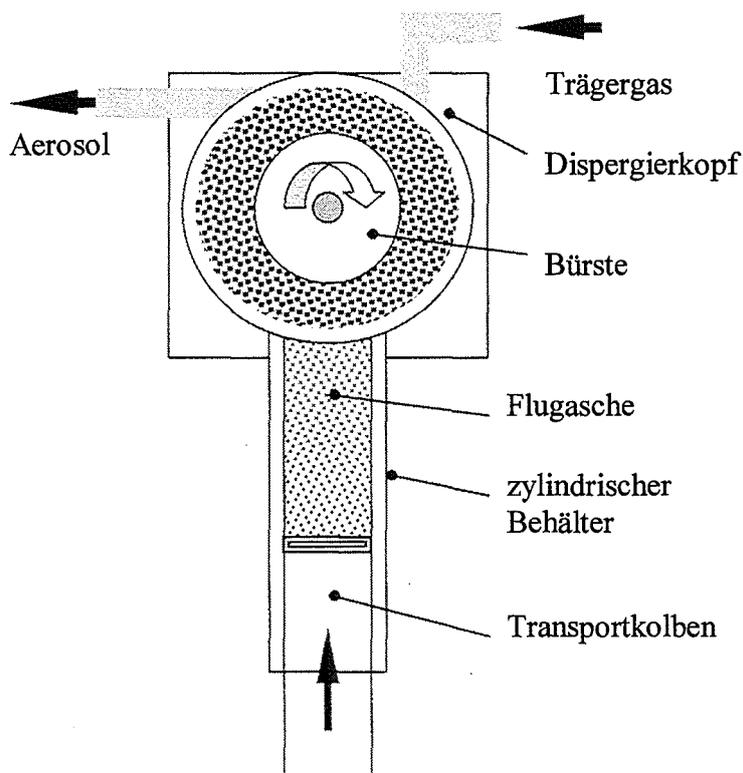


Bild 7. Das Funktionsschema des Bürstendosierers

In einem Edelstahlblock (Dispergierkopf) ist eine Bürste drehbar gelagert. Unterhalb dieser Bürste befindet sich der zylindrische Feststoffbehälter, der mit der Flugasche gefüllt ist. Mit Hilfe eines Transportkolbens (geregelter Vorschubgeschwindigkeit) wird die Flugasche aus dem Behälter gegen die rotierende Bürste geschoben und von dieser in den oberen Teil des Dispergierdeckels befördert. Dort wird die abgetrennte Flugstaubschicht von einem Luftstrahl mit hoher Geschwindigkeit (Dispergierluft) aus der Bürste geblasen und aus dem Gehäuse heraus transportiert. Der Feststoffdurchsatz ist hierbei von den Guteigenschaften weitgehend unabhängig.

Vor der Dispergierung wird die Flugasche aufbereitet. Dabei ist darauf zu achten, daß die Flugasche homogen durchmischt und frei von groben Partikeln ist. Um die Desagglomeration zu fördern, sollten feuchte Stäube vorgewärmt werden.

Beim Einfüllen wird die Flugasche nach und nach in den Dosierzylinder eingefüllt und dabei jedesmal durch Stopfen leicht verdichtet, damit sich die Stopfdichte in der Feststoffprobe ausgleicht. Prinzipiell ist darauf zu achten, daß beim Einfüllen keine Entmischung auftritt. Nur konstante Stopfdichte über die Höhe des Behälters garantiert bei konstantem Vorschub eine konstante Dosierrate [19, 21].

Der Feststoff-Massenstrom kann im Voraus über die Wahl der Vorschubgeschwindigkeit des Dosierkolbens reproduzierbar eingestellt oder während des Dosierens kontinuierlich verändert werden. Da die Querschnittsfläche des Kolbens und die mittlere Stopfdichte bekannt sind, ergibt sich folgender Feststoff-Massenstrom:

$$\dot{m} = A \cdot v \cdot \rho_s ; \quad \rho_s = \frac{\Delta m}{A \cdot L} \quad (3.1)$$

Hierin bedeuten \dot{m} der Feststoffmassenstrom in mg/h, A der Querschnittsfläche des Kolbens in mm², v die Vorschubgeschwindigkeit des Kolbens in mm·h⁻¹, L die Höhe des mit Feststoff eingefüllten Behälters in mm, Δm die Masse des Feststoffes im Behälter in mg und ρ_s die mittlere Stopfdichte des Feststoffes in g·cm⁻³.

Die Massenkonzentration des Aerosols c_m berechnet sich aus dem Massenstrom m und dem Volumenstrom V des Trägergases nach der Beziehung:

$$c_m = \frac{\dot{m}}{\dot{V}} \quad (3.2)$$

Der Volumenstrom des Trägergases ist abhängig vom Vordruck. Über ein Druckmindererventil mit Manometer kann anhand einer Volumenstromkurve der gewünschte Durchfluß eingestellt werden (siehe 4.5). Bei vorgegebener Stopfdichte (Materialeigenschaft) kann nun über die freien Parameter v , \dot{V} und d (Durchmesser des Feststoffbehälters) der Massenstrom bzw. die Massenkonzentration in weiten Grenzen variiert und definiert eingestellt werden.

Für den Versuch stehen Feststoffbehälter mit Durchmesser von 7 mm und 28 mm zur Verfügung. Der Feststoffbehälter mit dem Durchmesser 7 mm ist nicht geeignet (zu klein) für die Betriebsbedingungen in diesen Messungen. Es wurde mit dem Feststoffbehälter 28 mm gearbeitet. Dieser hat einen Nachteil, daß man für die Betriebsbedingungen in dieser Arbeit ($c_m = 50, 200$ und 500 mg/m^3) nur im unteren Bereich der Vorschubgeschwindigkeit arbeiten kann. Ideal wäre ein Feststoffbehälter mit Durchmesser von 14 mm oder 20 mm.

3.1.2.3 Die isokinetische Probenahme

Die Probenahme von Aerosolen ist ein wesentlicher Verfahrensschritt, der das Meßergebnis entscheidend beeinflussen kann. Andererseits liefert die Aerosolphysik für die meisten der dabei auftretenden Probleme einfache Abschätzungsmöglichkeiten, die es ermöglichen, ein Probenahmesystem optimal auszulegen [5].

Um eine gleichmäßige und von der Partikelgröße unabhängige und repräsentative Probenahme sicherzustellen, ist es notwendig einen Teilstrom isokinetisch, d.h. mit gleicher Geschwindigkeit wie der Hauptstrom zu entnehmen. Bild 8 macht dies schematisch deutlich. Für drei verschiedene Fälle ist hier der Verlauf der Stromlinien in der Nähe einer dünnwandigen Absaugsonde dargestellt [5].

Im isokinetischen Fall (linkes Bild) verlaufen die Stromlinien praktisch ungestört und alle Partikel, die die Sonde im Bereich des Öffnungsquerschnitts anströmen, werden auch gesammelt. Im Falle einer zu langsamen Absaugung (mittleres Bild) nimmt der Abstand der Stromlinien im Bereich der Sondenöffnung zu. Träge Partikel, die den gekrümmten Verlauf der Stromlinien nicht folgen können, können dadurch in die Sonde gelangen, obwohl die Stromlinien, auf der sie sich

ursprünglich befanden, an der Sonde vorbeigehen. Dadurch werden zu viele große (träge) Partikel gesammelt.

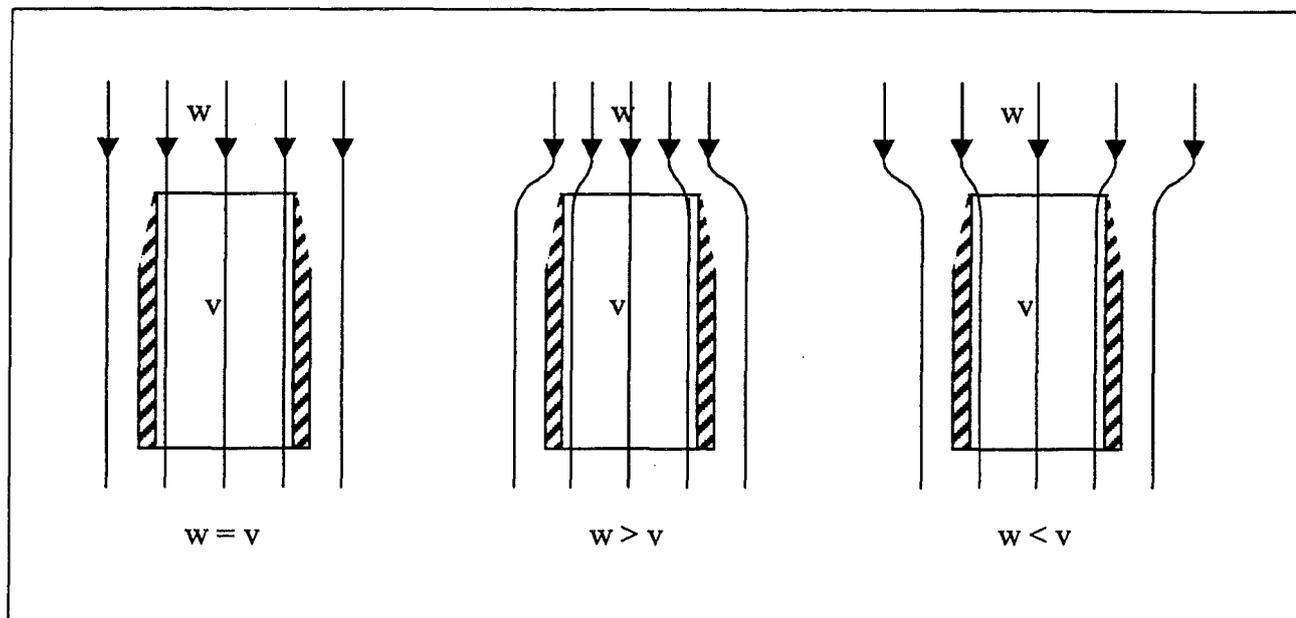


Bild 8. Zur Definition der isokinetischen Probenahme für dünnwandige Sonde [5]

Ist die Absaugung zu schnell (rechtes Bild), wird Aerosol aus einem Querschnitt angesaugt, der größer als die Sondenöffnung ist. Dies führt zu einer Krümmung der Stromlinien zur Sonde hin. Auch hier können träge Partikel den Stromlinien nicht mehr folgen und fliegen dadurch an der Sonde vorbei, obwohl die zugehörige Stromlinie in die Sonde eintritt. Dies führt dazu, daß zu wenig Partikel gesammelt werden.

Die VDI-Richtlinie 2066 gibt Information über die Randbedingungen für die Auslegung der isokinetischen Entnahmesonde. Der zu wählende Wirkdurchmesser der Sonde richtet sich nach der Geschwindigkeit des Hauptstromes und der Absaugleistung des verwendeten Meßgerätes. Die anderen Abmessungen sind nach diesen Richtlinien ausgelegt worden. Bild 9 zeigt die Sonde, die in den Messungen dieser Arbeit verwendet wurde.

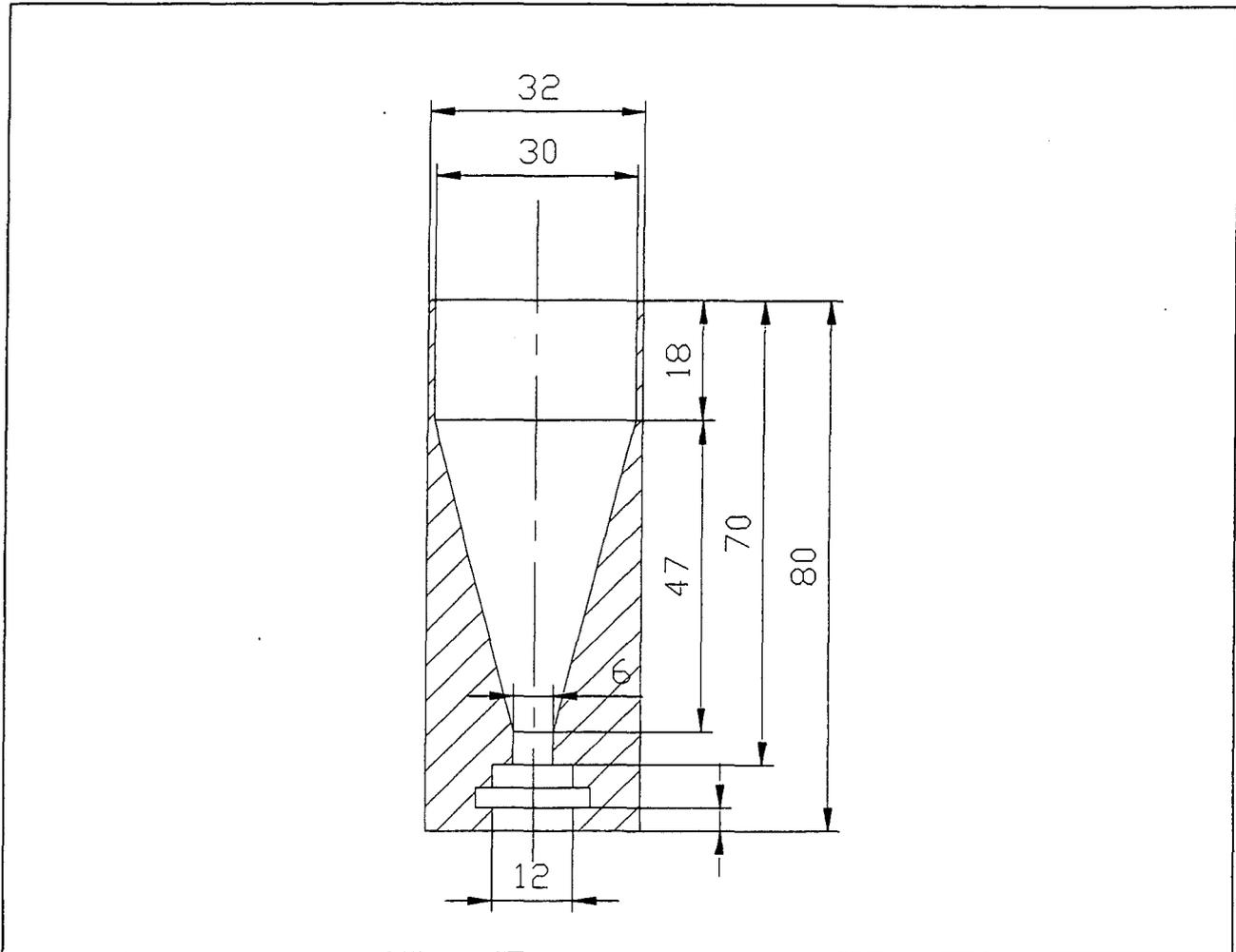


Bild 9. Die Probennahmesonde

3.1.2.4 Befeuchtungsanlage

Es wird ein Partikelwachstum durch Erhöhen der relativen Feuchte erzeugt. Dazu wird die niedrige relative Feuchte der partikelhaltigen Luftströmung durch die Zugabe befeuchteter Luft erhöht. Diese wird in einer Befeuchtungsanlage erzeugt.

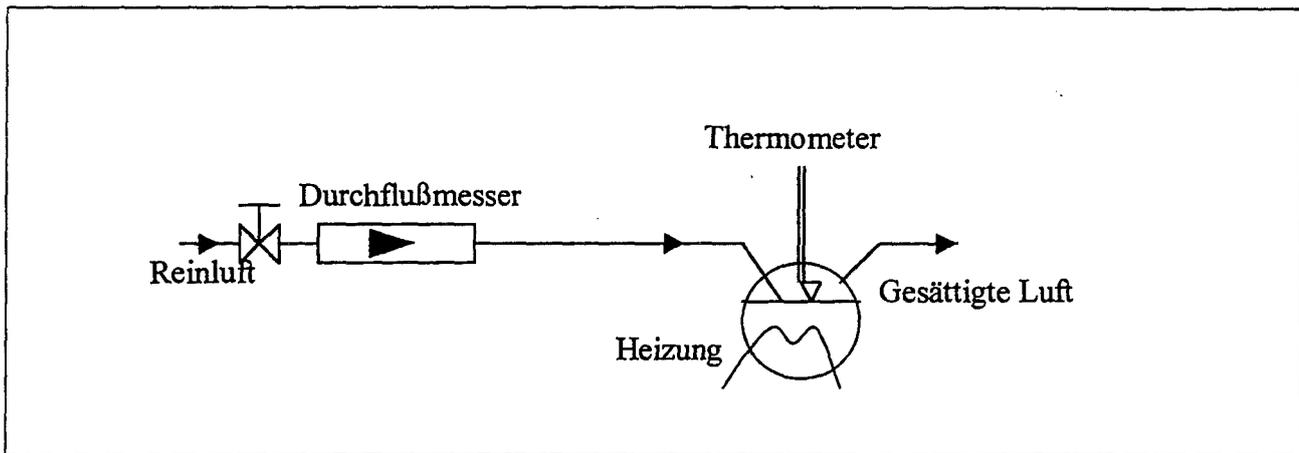


Bild 10. Die Befeuchtungsanlage

Ein aus der Netzleitung gefilterter Luftvolumenstrom wurde in einen Dreihalskolben eingeleitet. Durch ein Feinregulierventil kann der Volumenstrom eingestellt werden. Im Dreihalskolben befindet sich bidestilliertes Wasser. Durch ein Glasrohr wird die Luft unter die Oberfläche des Wassers geleitet. Beim Aufsteigen an die Wasseroberfläche und Durchströmen des mit Wasserdampf gefüllten Glaskolbens nimmt die Luft Feuchtigkeit auf. Dieser Prozeß wird dadurch verstärkt, daß das Wasser auf ca. 80 °C erwärmt wird.

Die Luft verläßt den Dreihalskolben mit einer relativen Feuchte nahe der Sättigung. Sie wird dem Aerosolgenerator nach der Trockenstrecke zugeführt. Durch die Einstellung des Volumenstroms kann die relative Feuchte im Aerosolgenerator reguliert werden. Die partikelhaltige Luftströmung hat eine relative Feuchte von ca. 5 %. Um diese auf ca. 95 % zu erhöhen, mußten ca. 4 l befeuchtete Luft pro Minute zugegeben werden.

Der Volumenstrom der trockenen Luft im Aerosolgenerator beträgt ca. $84 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$. Die Erhöhung des Volumenstroms durch die Zuführung der befeuchteten Luft ($4 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$) beträgt somit nur 5 % und kann daher vernachlässigt werden.

3.1.2.5 Feuchte- und Temperaturfühler

Es handelt sich hierbei um einen zylindrischen Stab, an dessen Ende sich eine kleine Keramikplatte mit einer feuchteempfindlichen Polymerschicht befindet. Diese bildet die Verbindung zwischen zwei Elektroden. Dieses Schichtsystem stellt einen feuchteabhängigen Kondensator dar, dessen Kapazität ein Maß für die umgebende relative Feuchte ist. Der Feuchtefühler ist mit einem Anzeigegerät verbunden, von dem direkt die gemessene relative Feuchte in einem Meßbereich von 0 bis 100 % mit einer Genauigkeit von 2% abgelesen werden kann.

3.1.2.6 Durchflußmesser

Bei der Durchführung der Messungen wurden zwei Arten von Durchflußmesser verwendet. Diese sind der Massendurchflußmesser der Firma Bronkhorst High-tech B.V. und der Mass-Flowmeter der Firma Hasting.

Der Durchflußmesser der Firma Bronkhorst wurde bei der Volumenstrommessung für die Befeuchtung verwendet und hat einen Meßbereich bis zu 20 l/min. Er arbeitet nach dem Prinzip des Wärmetransports, wobei die Differenztemperatur an einem beheizten Teilstück eines Kapillarrohres gemessen wird. Das Laminardurchflußelement ist so konstruiert, daß die Durchflußbedingungen dort mit denen in der Kapillare übereinstimmen. Daraus ergibt sich, daß beide Durchflüsse proportional sind. Die Differenztemperatur ist direkt proportional dem Massendurchfluß. Diese wird von einem Temperatursensor aufgenommen und auf das gewünschte Ausgangssignal verstärkt.

Der Mass-Flowmeter der Firma Hasting wurde bei der Ermittlung der Volumenstromkurve des Staubdispergerer RBG 1000 eingesetzt. Er hat einen Meßbereich bis 50 l/min. Der Durchflußmesser kann aber zum Messen größerer Durchflußmengen oberhalb von 50 l/min benutzt werden. Die Anzeige-Genauigkeit des Geräts beträgt ca. 2% vom Vollausschlag.

3.1.2.7 Verdünnungsstufe

Für Messungen mit Massenkonzentration von 500 mg/m^3 wurde die Verdünnungsstufe VKL-10 der Firma Palas eingesetzt. Eine Verdünnungsstufe hat in erster Linie den Zweck, die Anzahlkonzentration eines vorgegebenen Partikelstroms herabzusetzen, ohne die Partikelgrößenverteilung zu ändern.

Im Verdünnungssystem VKL-10 wird dies dadurch erreicht, daß eine definierte Menge Reinluft mit einer definierten Menge des Probenstroms homogen durchmischt wird. Die externe Reinluft strömt durch eine Ringdüse (Injektorprinzip), wobei ein Unterdruck entsteht, der die Ansaugung des Probenstroms gewährleistet. Die Proben- und die Reinluftmenge stehen in einem vorgegebenen, festen Verhältnis. Bei dieser Verdünnungsstufe wird der Probenstrom um den Faktor 10 verdünnt.

3.1.2.8 Der Gasprobenehmer DESAGA

Zur Förderung des Gasprobenstromes und zur Messung und Einstellung der Strömungsgeschwindigkeit des Gasprobenstromes wurde der Gasprobenehmer DESAGA eingesetzt. Für diesen Zweck ist das Gerät mit einer Pumpe, einem Stellventil, einem Durchflusssensor und einer Trockengasuhr ausgerüstet.

Nach der Absaugung strömt das Probegas durch das Stellventil und den Durchflusssensor. Probegasströme von 0,2 bis 12 l/min können geregelt werden. Das Gasvolumen wird mit der Trockengasuhr gemessen. Die Volumenmessung hat eine Genauigkeit von 2%. Zur Entnahme von Aerosol- und Staubproben sind geeignete Filter an das Gerät zusätzlich anzuschließen.

3.2 Das Streulicht-Partikelgrößen-Zählverfahren

Zu den charakteristischen Merkmalen eines dispersen Systems gehören die Konzentration und die Größenverteilung der Partikeln. Beim Streulicht-Partikelgrößen-Zählverfahren werden diese Merkmale durch die Messung und Zählung der Streulichtimpulse gewonnen, die von den einzelnen Partikeln beim Durchströmen einer sehr kleinen, homogen ausgeleuchteten Meßvolumens erzeugt werden. Dieses Meßverfahren stellt das bekannteste indirekte Verfahren dar, bei dem aus einem physikalischen Effekt auf die Partikelgröße geschlossen wird.

Das Streulicht-Partikelgrößen-Zählverfahren wird bevorzugt in der Reinraum- und der Aerosolmeßtechnik eingesetzt. Es eignet sich zur Absolutmessung der Anzahlkonzentration und zur kontinuierlichen Bestimmung und Überwachung der Größenverteilung von Aerosolpartikeln.

3.2.1 Grundlage des Streulicht-Meßverfahrens

Eine Lichtwelle, die auf ein Teilchen trifft, wird von dem Teilchen auf verschiedene Weisen beeinflusst [29]:

- Ein Teil der Lichtenergie wird vom Teilchenmaterial absorbiert.
- Lichtstrahlen werden an der äußeren Oberfläche reflektiert.
- Es tritt Lichtbeugung auf.
- Strahlen, die in das Innere des Teilchens eindringen, treten nach zweimaliger Brechung wieder aus und werden gleichzeitig an den inneren Trennflächen reflektiert.

Die drei letztgenannten Phänomene werden unter dem Begriff „Streuung“ zusammengefaßt. Die Extinktion des Lichtes - Absorption und Streuung - beschreibt demnach die Abschwächung einer durch Teilchen gestörten Lichtwelle.

Die allgemeine Theorie dieser komplexen Vorgänge wurde erstmals von G. Mie im Jahre 1908 beschrieben. Er untersucht die Lichtstreuung an einer homogenen Kugel in einem ebenen, monochromatischen Wellenfeld. Die Streulicht-Theorie liefert als Maß für das an einer kugelförmigen Partikel gestreute Licht die sogenannte Streufunktion i . In der Literatur wird die Streufunktion i als dimensionslose Streulichtintensität bezeichnet. Sie hängt ab vom:

- Streuwinkel θ

- Teilchendurchmesser d
- Polarisationswinkel ϕ
- komplexen Brechungsindex des Partikelmaterials m
- der Wellenlänge des einfallenden Lichts λ

$$i = i(\theta, d, \phi, m, \lambda) \quad (3.3)$$

Partikeldurchmesser d und Wellenlänge λ ergeben hierbei den dimensionslosen Größenparameter

$$\alpha = \pi \cdot d \cdot \lambda^{-1} \quad (3.4)$$

Der Verlauf der Streufunktion i über α kann in drei Bereiche unterteilt werden:

| | |
|---------------------------|--|
| $\alpha < 0,3$ | Bereich der <i>Rayleigh-Streuung</i> |
| $0,3 \leq \alpha \leq 30$ | Bereich der <i>Mie-Streuung</i> |
| $\alpha > 30$ | Gültigkeitsbereich der sog. <i>geometrischen Optik</i> |

Ein generelles Merkmal kleiner Partikel ist ihr unterschiedliches Streuverhalten für Partikelgrößen unterhalb und oberhalb der Wellenlänge des beleuchtenden Lichts. Im Bild 11 ist die relative Streulichtintensität submikroner Partikeln für einen mittleren Streuwinkel $\theta = 40^\circ$ über dem Partikeldurchmesser d aufgetragen [39]. Für die Berechnungen wurde Laserlicht der Wellenlänge $\lambda = 0,63 \mu\text{m}$ angenommen.

Man erkennt, daß im Bereich der *Rayleigh-Streuung* ($\alpha < 0,3$ bzw. $d < 0,1 \cdot \lambda$) die Kurven für monochromatisches Licht monoton verlaufen und eine d^6 -Abhängigkeit besteht. Verändert man bei konstantem Realteil den Imaginärteil des Brechungsindex, so treten nur geringfügige Änderungen im Kurvenverlauf auf, d.h. transparente und lichtabsorbierende Partikelmaterialien unterscheiden sich im Streuverhalten nur unwesentlich.

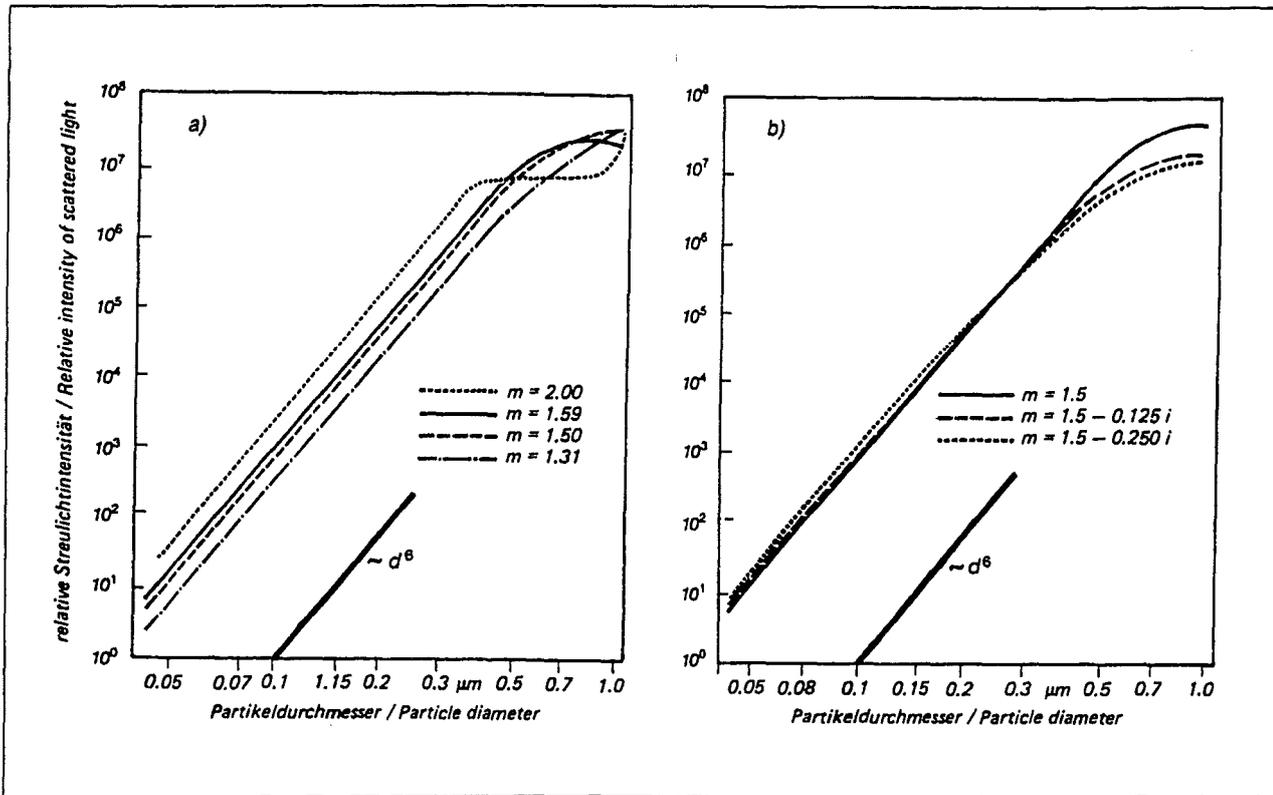


Bild 11. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für monochromatisches Licht im Partikelgrößenbereich unterhalb der Lichtwellenlänge [39]:

- a) für variierenden Realteil des Brechungsindex
- b) für variierenden Imaginärteil des Brechungsindex

Im Partikelgrößenbereich der *Mie-Streuung* nimmt die relative Streulichtintensität außerhalb des Beugungsanteils im Mittel proportional mit d^2 zu, wobei der Kurvenverlauf für monochromatisches Licht noch eine oszillierende Feinstruktur erhält. Diese Oszillation führt zu Mehrdeutigkeiten (siehe Bild 12). Damit das Prinzip der Streulichtmessung als Grundlage eines Meßgerätes eingesetzt werden kann, muß in diesem Größenbereich eine eindeutige Zuordnung des Partikeldurchmessers zur Streulichtintensität gegeben sein. Dies wird durch die Verwendung von weißem Licht erreicht.

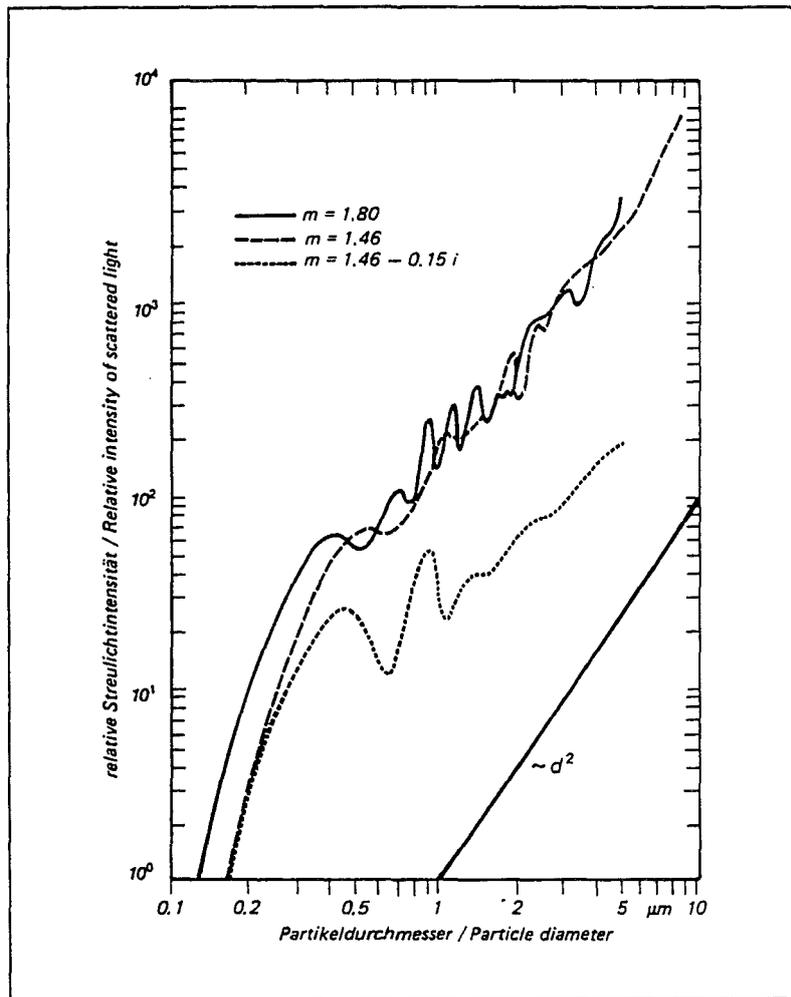


Bild 12. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für monochromatisches Licht im Partikelgrößenbereich der *Mie-Streuung* [39]

Die Verwendung von weißem Licht im Streulichtmeßgerät hat den Vorteil, daß die Mehrdeutigkeit, die im Falle des monochromatischen Lichtes besteht, beseitigt wird. Es findet eine Glättung des Kurvenverlaufes statt. Eine eindeutige Abhängigkeit der Streulichtintensität I vom Partikeldurchmesser d wird möglich. Allerdings bleiben die Unterschiede zwischen transparenten und lichtabsorbierenden Partikelmaterialien hingegen bestehen (siehe Bild 13). Die Streulichtintensität ist unter diesen Bedingungen proportional zum Quadrat des Partikeldurchmessers.

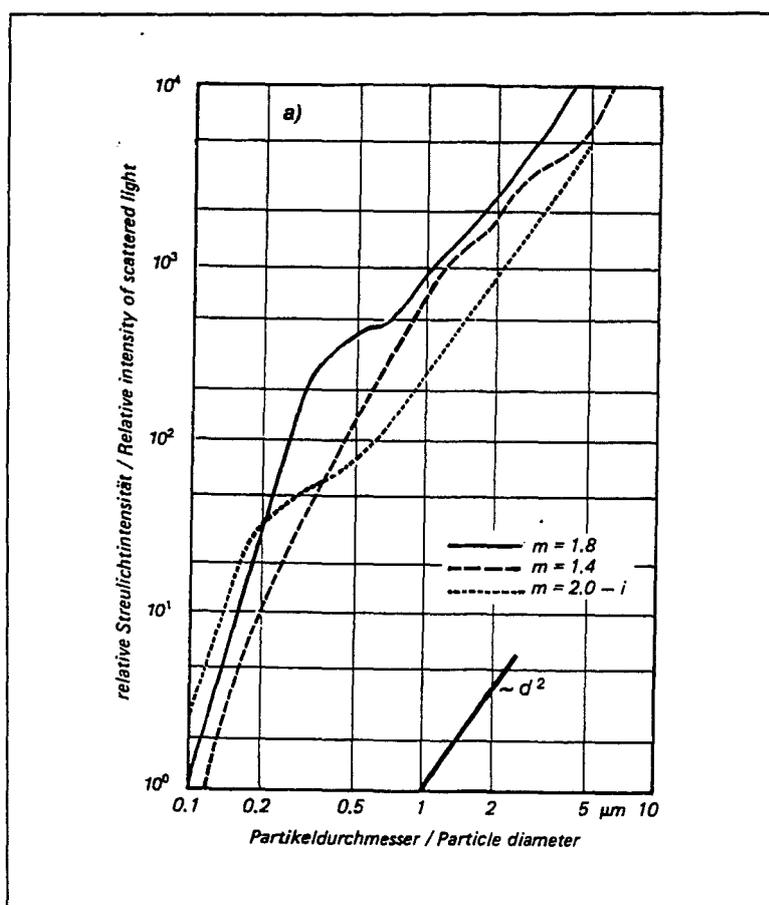


Bild 13. Relative Streulichtintensität in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser und den optischen Konstanten der Partikeln für Glühlicht im Partikelgrößenbereich der *Mie-Streuung* mit mittlerem Streuwinkel $\theta = 90^\circ$ [39]

3.2.2 Der optische Partikelzähler PCS 2000

Kommerzielle optische Partikelzähler können in zwei Gerätearten eingeteilt werden. Die erste Art sind Geräte, die die Vorwärtsstreuung ausnutzen. Die zweite sind die 90°-Instrumente, die das Streulicht unter 90° zur Einfallsrichtung auswerten.

Der Partikelanalysator PCS 2000 ist ein 90°-Instrument. Er mißt das von einzelnen Partikeln beim Durchqueren eines intensiv beleuchteten Meßvolumens gestreute Licht unter dem rechten Winkel. Bild 14 zeigt den prinzipiellen Aufbau des Geräts.

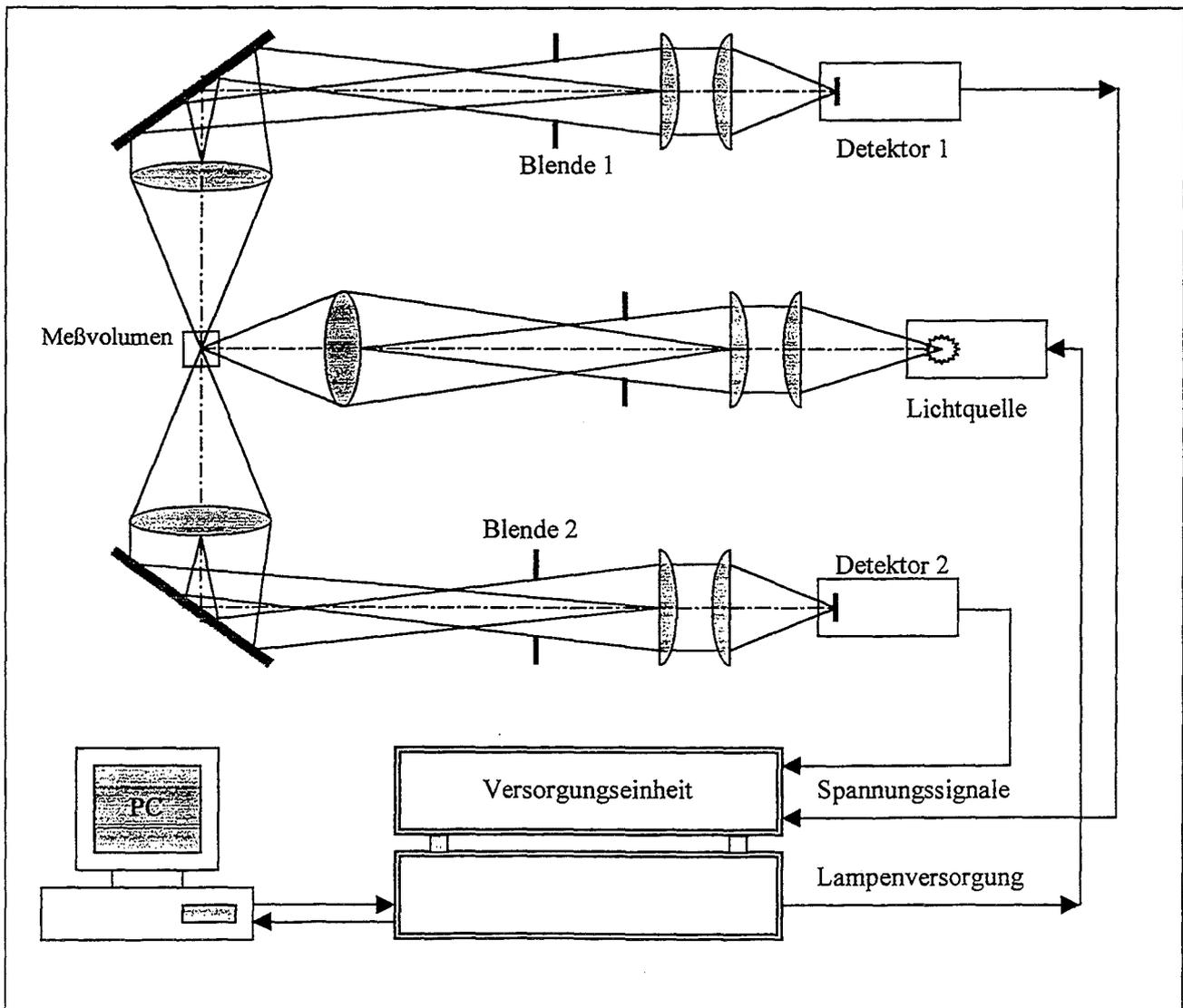


Bild 14. Prinzipieller Aufbau des Streulichtanalysator PCS 2000

Das Licht einer Xenon-Hochdrucklampe beleuchtet über eine Blende und eine entsprechende Abbildungsoptik das Meßvolumen. Befindet sich ein Partikel im Meßvolumen, wird es vom Licht angestrahlt. Das gestreute Licht wird jeweils unter einem mittleren Winkel von 90° von zwei Photomultipliern detektiert. Dort wird der Lichtimpuls in eine elektrische Spannung umgewandelt und der Versorgungseinheit zugeführt.

Die Höhe des Streulichtimpulses ist ein Maß für die Partikelgröße, während die Anzahl der Impulse der Partikelkonzentration proportional ist. Die Streulichtimpulse werden nach ihrer Höhe geordnet und in verschiedenen Kanälen eines Mehrkanal-Analysator abgespeichert. Daraus erhält man eine Häufigkeitsverteilung der Impulshöhen der Partikeln in einem vorgegebenen Größenbereich, die entweder als Verteilungsdichte oder als Verteilungssumme angegeben werden kann. Durch Umrechnung anhand von Kalibrierungskurven sowie Normierung ergeben sich dann die eigentlichen Partikelgrößenverteilungen.

3.2.3 Sensitivitätsanalyse des Streulichtmeßgeräts

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Sensitivität des Streulichtmeßgeräts anhand der literarischen Quellen untersucht. Folgende Aspekte werden bei der Sensitivitätsanalyse hinsichtlich ihrer Auswirkungen auf das Meßergebnis erläutert:

- Fehler durch Randzoneneffekt,
- Koinzidenzfehler,
- Einfluß des Brechungsindex des untersuchten Stoffes,
- Einfluß der Partikelform.

3.2.3.1 Fehler durch Randzoneneffekt

Das Prinzip eines Streulicht-Partikelgrößen-Zählverfahrens verlangt die Abgrenzung eines hinreichend kleinen, gleichmäßig ausgeleuchteten Meßvolumens, durch das sich die Partikeln zur Zählung und Größenbestimmung einzeln hindurchbewegen. Um das zu ermöglichen, erfolgt die Abgrenzung des Meßvolumens im PCS 2000 mit rein optischen Mitteln (siehe Bild 14). Die optische Kantenlänge des Meßvolumens beträgt ca. $100\ \mu\text{m}$.

Die reine optische Abgrenzung des Meßvolumens hat einen prinzipiellen Nachteil, daß Teilchen, die genau den Rand des Meßvolumens schneiden, nicht völlig beleuchtet werden. Ihre Streulichtimpulse sind kleiner, als es ihrer Größe entspricht.

Nimmt man an, daß alle randgängigen Teilchen falsch registriert werden und das Meßvolumen ca. $10^6 \mu\text{m}^3$ beträgt [42], so ergibt sich für Teilchen von:

- 10 μm Durchmesser ein maximaler Fehler von 30%,
- 5 μm Durchmesser ein maximaler Fehler von 15%,
- 1 μm Durchmesser ein maximaler Fehler von 3%.

Um dies zu verhindern, müßte man das betrachtete Meßvolumen vergrößern. Damit erhöht man aber die Wahrscheinlichkeit, daß sich nicht nur ein Partikel im Meßvolumen befindet. In der Praxis wird das Problem dadurch gelöst, daß die beiden Photomultiplier durch Anordnung von Blenden unterschiedlich große Meßvolumen beobachten. Bild 15 zeigt den Querschnitt durch die unterschiedlich großen Meßvolumen des PCS 2000.

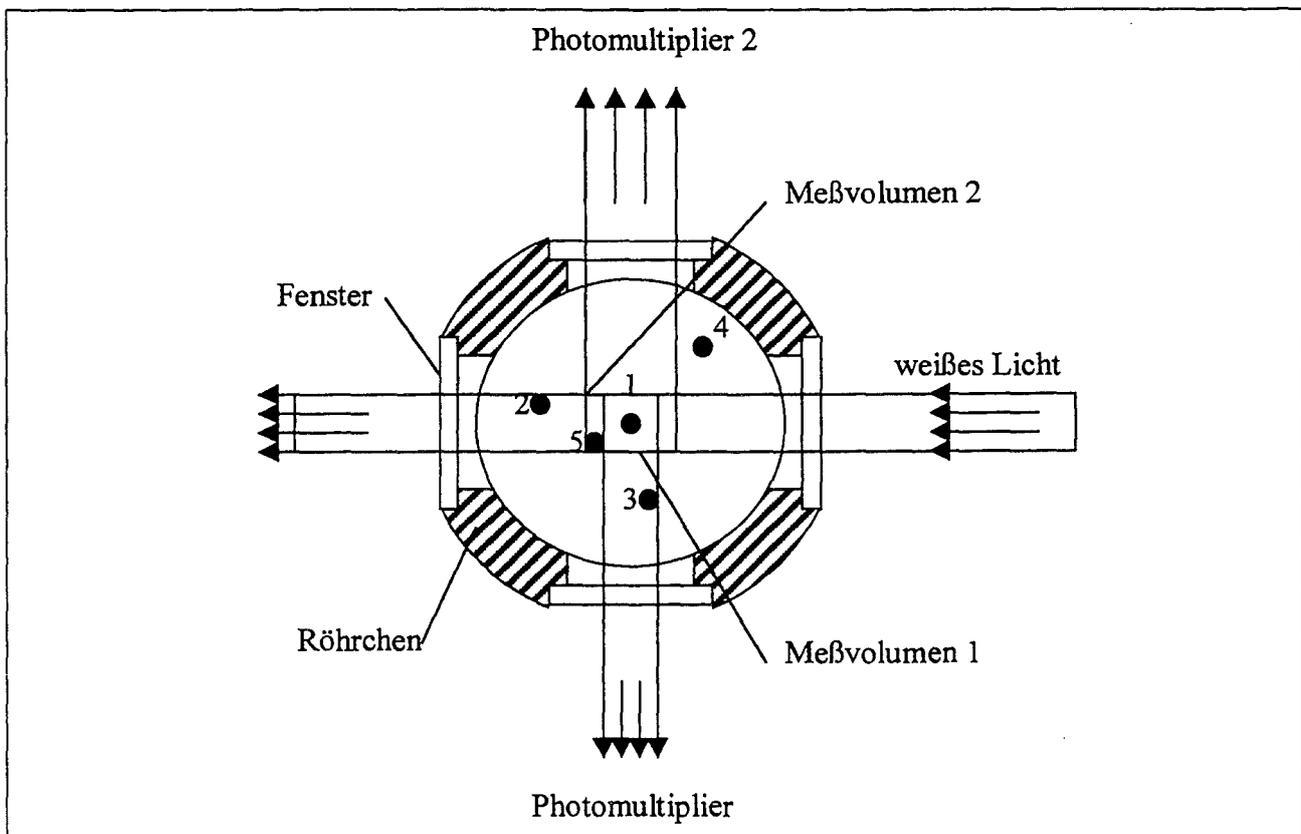


Bild 15. Querschnitt durch die unterschiedlich großen Meßvolumen des PCS 2000

Die Partikeln werden durch ein Röhrchen geführt, welches senkrecht im Meßgerät angebracht ist. Das Röhrchen enthält in der Mantelfläche vier Fenster, die jeweils um 90° versetzt sind. Eine Weißlichtquelle beleuchtet durch zwei gegenüberliegende Fenster einen Teil des Röhrchens. Durch rechteckige Blenden erhält dieser Lichtstrahl eine rechteckige Querschnittsfläche. Die Fenster zur Beobachtung durch die Photomultiplier sind um 90° versetzt angeordnet. Somit entstehen zwei quaderförmige Kontrollräume, wobei der Kontrollraum 2 ein etwas größeres Meßvolumen hat als der Kontrollraum 1.

Im Bild 15 sind fünf verschiedene mögliche Lagen der Partikeln im Meßvolumen dargestellt. Partikel 1 wird vom Licht voll beleuchtet und von beiden Photomultipliern mit der gleichen Lichtintensität erkannt und richtig registriert. Partikel 2 wird zwar beleuchtet, aber von keinem Photomultiplier erkannt. Partikel 3 könnte zwar erkannt werden, wird aber nicht beleuchtet. Partikel 4 wird weder beleuchtet, noch könnte es erkannt werden. Partikel 5 wird vom Photomultiplier 1 mit geringer Streulichtintensität erkannt, vom Photomultiplier 2 jedoch mit voller Streulichtintensität. Übersteigt die Signaldifferenz einen bestimmten Betrag, wird das Meßergebnis verworfen [27, 28].

3.2.3.2 Koinzidenzfehler

Eine genaue Bestimmung der Partikelgrößenverteilung und der Partikelanzahlkonzentration ist nur dann gewährleistet, wenn sich innerhalb des Meßvolumens zu jeder Zeit höchstens eine Partikel aufhält. Ansonsten rechnet man mit dem sog. Koinzidenzfehler, der durch den gleichzeitigen Aufenthalt zweier oder mehrerer Partikeln im Meßvolumen verursacht wird.

Je höher die Anzahlkonzentration ist, um so kleiner muß das Meßvolumen gemacht werden, damit der Anteil der Koinzidenzen hinreichend klein bleibt. Einer drastischen Verkleinerung des Meßvolumens sind aber Grenzen gesetzt, da damit die Wahrscheinlichkeit der Randzonenfehler erhöht wird. Man hat daher einen Kompromiß zu schließen, indem man eine gewisse nicht zu hohe Koinzidenzrate mit entsprechender Fehlerwirkung in Kauf nimmt [33].

Die Fehlerwirkung, die aufgrund von Koinzidenzen auftritt, besteht in der Verfälschung des zu bestimmenden Partikelmerkmals infolge von Signalüberlagerungen. Größere Partikeln werden vorgetäuscht und zu Lasten kleinerer Partikeln registriert. Der Vorgang bewirkt, daß die gemessenen Verteilungen gegenüber den wahren Verteilungen eine Verschiebung systematischer Art zum Groben hin aufweisen [33].

Geht man davon aus, daß die räumliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit einer Poissonverteilung genügt, so erhält man für die maximal zulässige Partikelanzahlkonzentration folgende Beziehung:

$$c_{N,max} = 0,1 / V_M \quad (3.5)$$

Hierin bedeuten $c_{N,max}$ die Anzahlkonzentration im Probegas und V_M das Meßvolumen. Mit einer Kantenlänge von ca. 100 μm für das quaderförmige Meßvolumen ergibt sich dadurch ein Meßbereich der Anzahlkonzentration bis zu 10^5 Partikel pro Kubikzentimeter Luft.

Die Festlegung der oberen Grenze der Partikelanzahlkonzentration $c_{N,max}$ durch die obere Gleichung führt zu einem maximalen Koinzidenzfehler von 10%. Koinzidenzfehler dieser Größenordnung hat nach [33] eine vernachlässigbar kleine Auswirkung auf die Größenverteilung der gemessenen Partikel. Übersteigt die Anzahlkonzentration den Wert 10^5 cm^{-3} , muß das Probegas mit einer Verdünnungsstufe aufbereitet werden.

Andererseits ermöglichen Raasch und Umhauer [33] zum ersten Mal eine rechnerische Korrektur der Partikelgrößenverteilung bei Überschreitung der nach Gleichung (3.5) berechneten Partikelkonzentration $c_{N,max}$. Die Korrektur ist sehr genau, solange:

$$c_{N,max} < 0,3/V_M \quad (3.6)$$

Sie ist bei eingeschränkten Genauigkeitsanforderungen auch noch darüber hinaus anwendbar und unabhängig vom Verteilungstyp. Der mögliche Einsatzbereich eines Streulicht-Partikelgrößen-Zählanalytators kann damit in Richtung höherer Partikelkonzentrationen beträchtlich erweitert werden.

3.2.3.3 Einfluß des Brechungsindex des untersuchten Stoffes

Als Kennlinie eines Streulichtpartikelzählers gilt die graphische Darstellung der Abhängigkeit der Streulichtintensität von der Partikelgröße. Der Verlauf dieser Kennlinie wird normalerweise aus der Mie-Theorie unter der Annahme eines bestimmten Partikelbrechungsindex berechnet und mit Messungen bestätigt. Die so ermittelte Eichkurve dient dann der Zuordnung einer gemessenen Streulichtamplitude zu einer Partikelgröße.

In Unterkapitel 3.2.1 wurde jedoch gezeigt, daß die Streulichtintensität mit wachsender Partikelgröße nur bei sehr kleinen Teilchen monoton ansteigt. Liegt die Partikelgröße im Bereich der Wellenlänge (ca. 0,3 bis 10 μm), erhält der Kurvenverlauf für monochromatisches Licht eine oszillierende Feinstruktur. Durch Verwendung von weißem Licht wurde die Oszillation zwar beseitigt, bleiben allerdings die Unterschiede zwischen Partikelmaterialien verschiedener Brechungsindizes hingegen bestehen (siehe Bild 13).

In der Regel beruht die vom Hersteller angegebene Zuordnung zwischen Partikelgröße und Größenklasse (Kanalnummer) auf einer Kalibrierung des Gerätes mit einem bekannten Prüfaerosol (meist Polystyrol-Latex-Partikeln, vgl. [39, 47]). Da die Intensität des an einer Partikel gestreuten Lichtes von der Partikelform, der Oberflächenbeschaffenheit und dem Brechungsindex abhängt, gilt die Kalibrierungskurve eigentlich nur für die Kalibrierungssubstanz.

Legt man die mit Latex-Partikeln bestimmte Kalibrierungskurve trotzdem der Partikelgrößenmessung für unbekannte Partikel zugrunde, so besitzt man zunächst nur den Zusammenhang zwischen der Streulichtimpulshöhe und dem Streulichtäquivalentdurchmesser der unbekanntes Partikel. Der Zusammenhang gibt an, daß eine unbekannte Partikel der Größe x denselben Streulichtimpuls wie eine Latex-Partikel des Durchmesser d . Der Grad der Übereinstimmung zwischen der tatsächlichen Größe der unbekanntes Partikel x und dem vom Gerät angezeigten Streulichtäquivalentdurchmesser d kennzeichnet die Güte des Ergebnisses [29, 31].

Der Einfluß des Brechungsindex auf die Streulichtintensität wurde mehrfach untersucht [36, 37, 38]. Cooke et al. [37] führen dies für fünf kommerziell erhältliche Partikelzähler durch. Wie Quenzel [36] stellen sie ebenfalls Abweichungen in der Abhängigkeit der Streulichtintensität von der Partikelgröße für verschiedene Brechungsindizes fest.

Der Einfluß vom Brechungsindex auf das Ergebnis von Partikelgrößenmessung kann man anhand des Bildes 13 ungefähr abschätzen. In seiner Arbeit [36] schlägt Quenzel vor, daß der zur Horizontalachse parallele Abstand zwischen der Linie von Kalibrierungssubstanz und der Kurve von untersuchten Partikel mit bestimmtem Brechungsindex die Ungenauigkeit bei der Partikelgrößenmessung angibt.

Das Streulichtmeßgerät PCS 2000 wird normalerweise mit Latex-Partikeln (Brechungsindex $\approx 1,58$) kalibriert. Wird man die Ungenauigkeitsermittlung nach Quenzel auf die Partikelgrößenmessung von Flugaschen im Trockenzustand übertragen, stellt man fest, daß der Fehler wegen des Einflusses des Brechungsindex vernachlässigbar ist, da der Brechungsindex von Flugaschen im Trockenzustand ca. 1,55 beträgt, und somit der Unterschied zum Brechungsindex von Latexpartikeln nicht zu groß ist.

Kritisch zu betrachten ist allerdings der Einfluß des Brechungsindex von Flugaschen im feuchten Zustand. Im feuchten Zustand ändert sich der Brechungsindex von 1,55 bis ca. 1,33 (Brechungsindex von reinem Wasser). Bell und Ho [38] haben diesen Effekt untersucht und festgestellt, daß die Partikeldurchmesser *kleiner* angezeigt werden, wenn ein Streulichtmeßgerät mit Latex-Partikeln kalibriert wird, und Partikeln mit Brechungsindizes im Bereich von 1,34 mißt. Die Abweichung beträgt bis zu 30%.

3.2.3.4 Einfluß der Partikelform

Wie bereits dargestellt wurde, muß bei Partikelgrößenbestimmung mit Streulichtmeßgerät ein eindeutiger und bekannter Zusammenhang zwischen der Streulichtintensität und der Partikelgröße gewährleistet werden. Der Zusammenhang kann durch Rechnungen oder geeignete Messungen hergestellt werden.

Im Falle der kugelförmigen, homogenen Partikel hängt die Streulichtintensität ausschließlich von der Lichtwellenlänge, der Partikelgröße, dem komplexen Brechungsindex und dem Streuwinkel (siehe 3.2.1). Bei unregelmäßig geformten Partikeln ist die Streulichtintensität jedoch zusätzlich eine Funktion der Partikelorientierung im Meßvolumen. Zur Verdeutlichung dieses Effekts zeigt Bild 16 im Vergleich das Ergebnis einer Mehrfachmessung an einer Kugel und einem unregelmäßig geformten Teilchen [34].

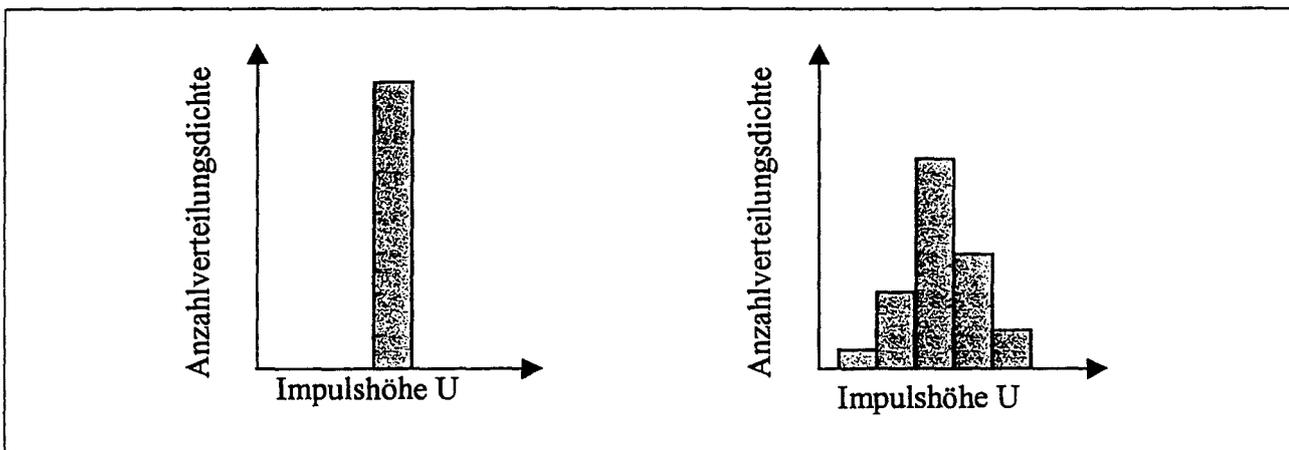


Bild 16. Vergleich der Mehrfachmessung einer Kugel und eines unregelmäßig geformten Teilchens [34]

Die Kugel liefert (bei Vernachlässigung von Meßfehlern) bei jedem Durchgang durch das Meßvolumen denselben Wert. Das unregelmäßig geformten Teilchen ergibt bei wechselnder Orientierung bei jedem Durchgang eine andere Impulshöhe und die Auswertung der Einzelsignale liefert ein Spektrum bestimmter Breite. Es gibt also keinen eindeutigen Zusammenhang zwischen dem Äquivalentdurchmesser der Partikel und der Streulichtintensität. Diese Tatsache, daß eine und

dieselbe Partikel in unterschiedlichen Größenkanälen gemessen werden kann, führt zu einer Verringerung des Auflösungsvermögens.

Weitere Untersuchungen in [34] zeigten, daß im Streuverhalten der Partikeln systematische Unterschiede bestehen, die im wesentlichen auf unterschiedlichen Oberflächenstrukturen beruhen. Partikeln mit *rauher Oberfläche* (z.B. Kalkstein) streuen das Licht diffus. Sie erzeugen relativ schmale Impulshöhenspektren. Der Formeinfluß ist in diesem Fall gering. Das Auflösungsvermögen ist bei der Bestimmung von Größenverteilungen nur wenig verringert, so daß Korrekturmaßnahmen i.a. *nicht notwendig* sind.

An Partikeln mit zumindest stückweise glatter Oberfläche werden jedoch schon bei geringer Abweichung von der Kugelform sehr breite Spektren gemessen (Glaskugeln, Quarz). Im Falle von Quarz sind dafür glatte Bruchflächen verantwortlich, die bei bestimmten Partikelorientierungen Lichtstrahlen mit hoher Intensität in den Detektor der Meßeinrichtung reflektieren. Der Formeinfluß bei der Messung an solchen Stoffen ist ausgeprägt. Das Auflösungsvermögen der Streulichtmeßeinrichtung wird stark beeinträchtigt. So wurde z.B. eine Verteilung, die aus zwei getrennten Partikelgrößenfraktionen mit einem Größenverhältnis von 1:2 bestand, bei der Streulichtmessung nicht mehr als bimodal erkannt. Der Streulichtanalysator gab eine breite monomodale Verteilung aus.

In [34, 35] wurden Verfahren entwickelt, die es ermöglichen, den Formeinfluß durch Experimente quantitativ zu erfassen, seine Auswirkung auf Messungen zu bestimmen und ihn aus gemessenen Partikelgrößenverteilungen zu eliminieren. Es wurde Simulationsprogramm und Software entwickelt, basierend auf einem Strahlverfolgungsverfahren, um das gemessene Verteilungen zu korrigieren und dadurch das Auflösungsvermögen zurückzugewinnen. Ausführliche Darstellungen sind in diesen Arbeiten zu finden.

4 Ergebnisse

4.1 Darstellung der gemessenen Partikelgrößenverteilung

4.1.1 Verteilungsdichte-Kurve und Verteilungssummen-Kurve

Durch Abgrenzung eines kleinen homogen beleuchteten Meßvolumens „sieht“ der Streulichtpartikelzähler bei der Messung nur einen für ihn charakteristischen Ausschnitt aus der gesamten Partikelgrößenverteilung. Man erhält daraus die Partikelanzahl, die in einem Größenkanal gemessen wurde, und kann daraus durch Division der Partikelanzahl durch das während einer Messung abgesaugte Luftvolumen die Anzahlkonzentration der Partikel pro Größenintervall berechnen. Der Quotient aus der Anzahlkonzentration eines Größenkanals und der Klassenbreite wird als Fraktionsdichte [6] bezeichnet. Für die Darstellung der Verteilung kann man zwei Arten von Klassenbreiten verwenden [49]:

lineare Intervallbreite :
$$\Delta D_p = D_o - D_u \quad (4.1)$$

logarithmische Intervallbreite :
$$\Delta \log D_p = \log D_o - \log D_u \quad (4.2)$$

Hierbei sind D_o und D_u der obere bzw. untere Intervallgrenzdurchmesser. In der aerosolphysikalischen Literatur bevorzugt man häufig die logarithmische Klassenbreite. Wegen der großen Spannweite der technischen Aerosole wird üblicherweise die Abszisse, auf der die Partikelgröße D_p abgetragen wird, logarithmisch geteilt. Zur Veranschaulichung wird ein Beispiel der Partikelgrößenverteilung von [49] im Bild 17 dargestellt.

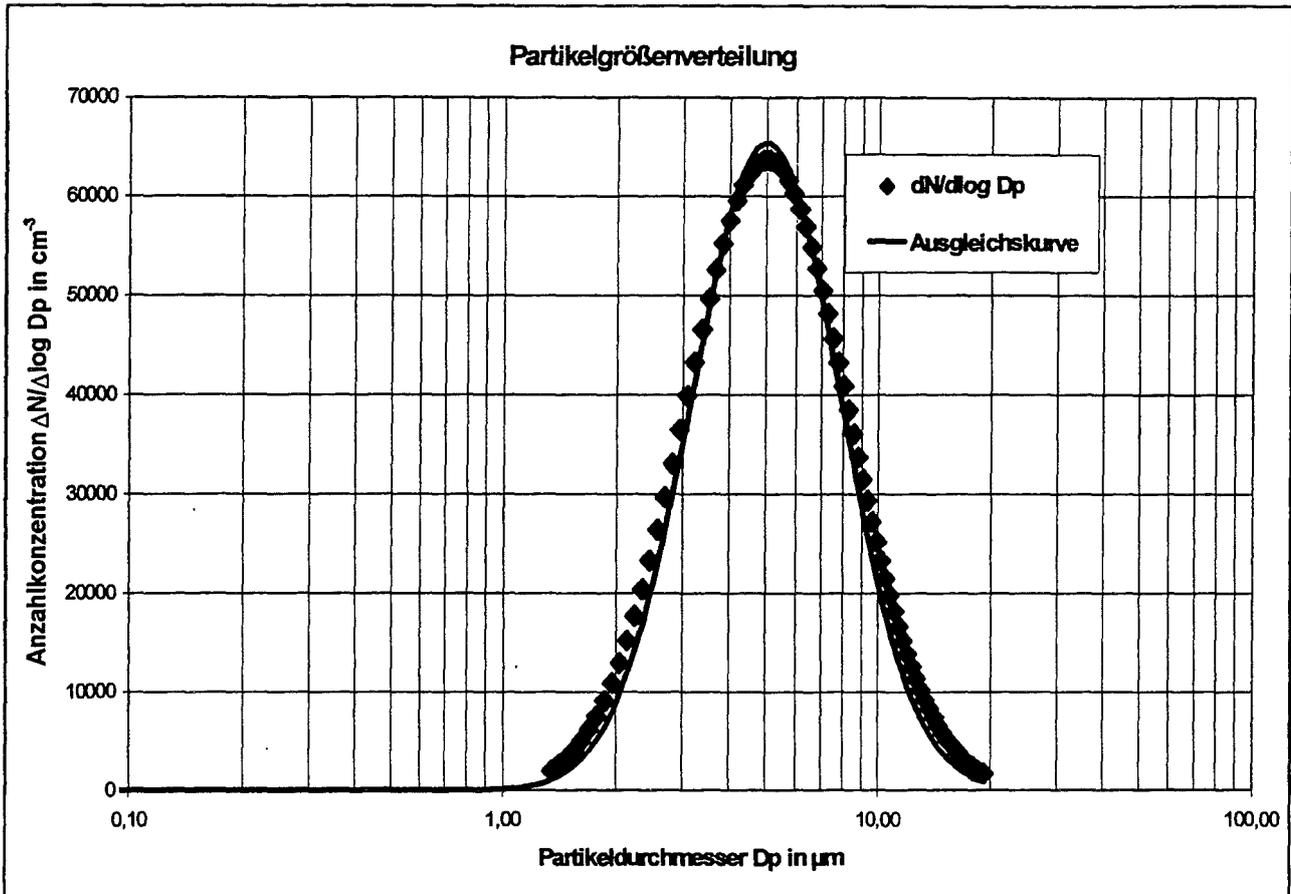


Bild 17. Darstellung einer Partikelgrößenverteilung mit logarithmischer Intervallbreite $\Delta \log D_p$

Die Meßpunkte der Anzahlkonzentration im Bild 17 zeigen eine Glockenform. Durch die Meßpunkte läßt sich eine Gauß-Funktion legen, die einer logarithmischen Normalverteilung zugrunde liegt. Nach [28] liegen als Verteilungskurven in der mechanischen Verfahrenstechnik vielfach logarithmische Normalverteilungen vor. Die Benennung der Verteilung verdeutlicht den engen Zusammenhang mit der Normalverteilung. Sie beschreibt die Normalverteilung des Logarithmus der Partikelgröße. Die Funktion dieser Kurve lautet:

$$f(D_p) = \frac{N}{\sqrt{2 \cdot \pi} \cdot \ln \sigma_g} \cdot e^{-\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\ln D_p / D_{\text{mod}}}{\ln \sigma_g} \right)^2} \quad (4.3)$$

Hierin sind N die Gesamtanzahlkonzentration, σ_g die geometrische Standardabweichung, D_{Mod} der Modalwert und D_p der Partikeldurchmesser. Mit den oben genannten Parametern lassen sich die gemessenen Verteilungen beschreiben.

Eine zweite Möglichkeit, den Zusammenhang zwischen Mengenanteil und Partikelgröße herzustellen, besteht darin, die relativen Häufigkeiten bis zu einer bestimmten Größenklasse aufzusummieren und die jeweilige Summe über den Durchmesser aufzutragen. Diese Darstellungsart nennt man die Anzahlverteilungssummen-Kurve. Bild 18 zeigt die Anzahlverteilungssummen-Kurve vom vorherigen Beispiel. Im Rahmen dieser Arbeit werden die beiden in Bild 17 und 18 gezeigten Darstellungsarten verwendet.

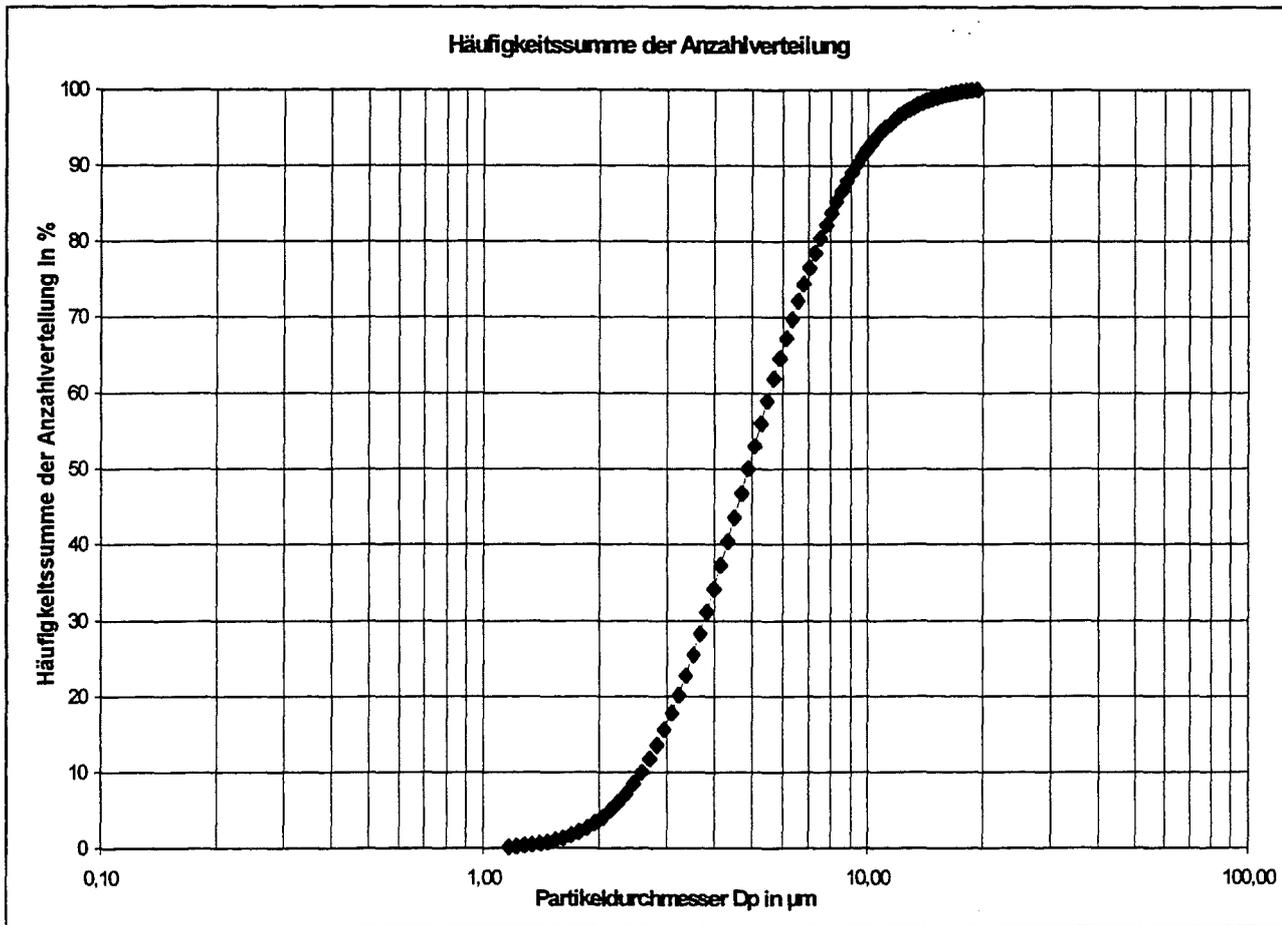


Bild 18. Häufigkeitssumme der Anzahlverteilung als Funktion der Partikelgröße D_p

In der mechanischen Verfahrenstechnik wird zur Beschreibung von Größenverteilungen der *Modalwert* D_{Mod} und der *Medianwert* D_{50} verwendet. D_{Mod} ist der Durchmesser mit der größten Anzahlkonzentration (siehe Bild 17), während D_{50} die Abszisse desjenigen Punktes der Verteilungskurve ist, bei dem die Summenverteilung 50% beträgt. In einer *logarithmischen Normalverteilung* entspricht der *Modalwert* D_{Mod} dem *Medianwert* D_{50} .

Für einfache Darstellungen von Verteilungssummen wird ein sog. logarithmisches Wahrscheinlichkeitsnetz eingesetzt. Im logarithmischen Wahrscheinlichkeitsnetz werden die Anzahlverteilungssummen in Abhängigkeit vom Teilchendurchmesser aufgetragen. Im Bild 19 ist die Häufigkeitssumme der Anzahlverteilung vom Bild 17 im logarithmischen Wahrscheinlichkeitsnetz dargestellt.

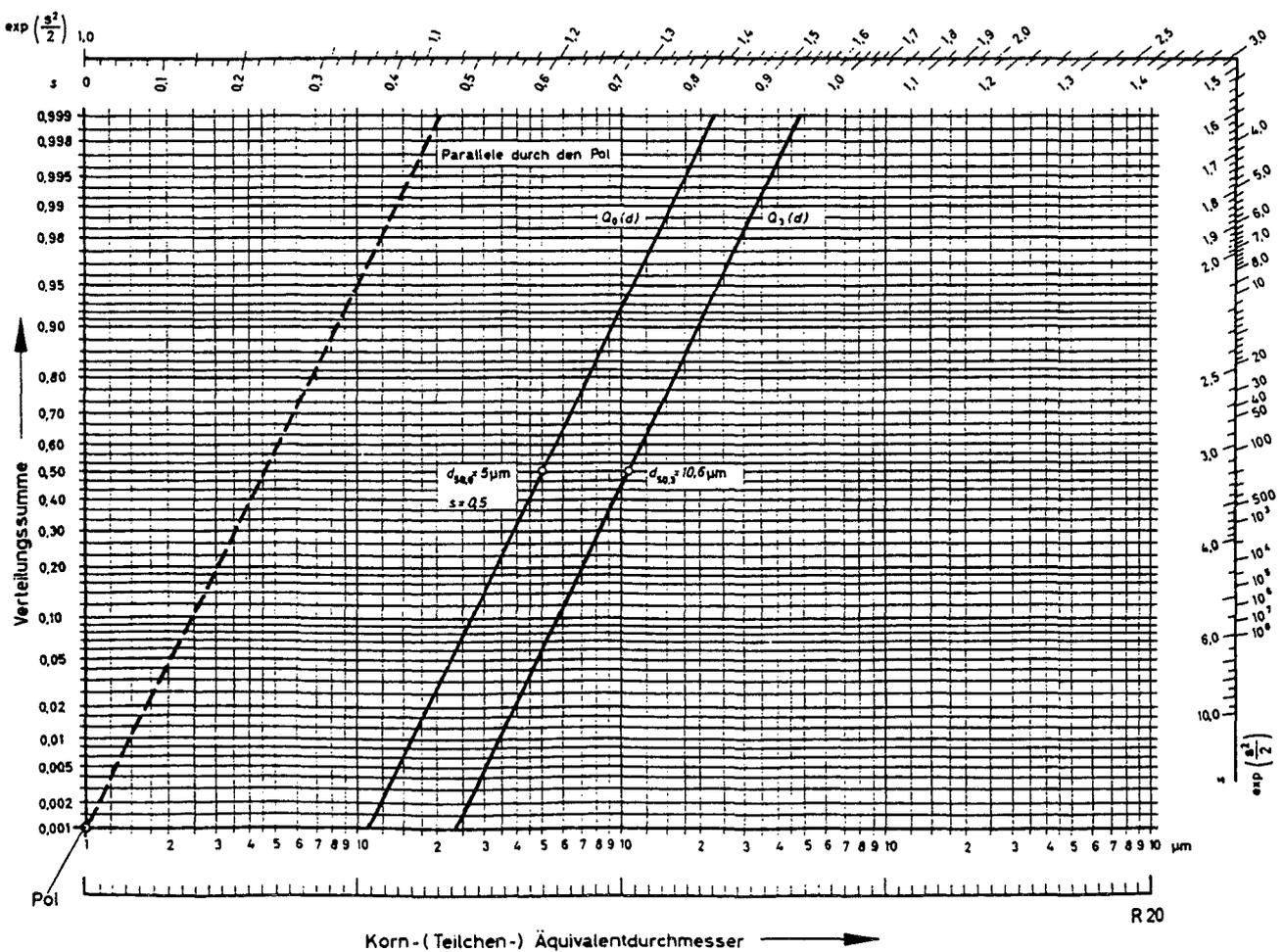


Bild 19. Verteilungssumme im logarithmischen Wahrscheinlichkeitsnetz

Wenn die Partikelgrößenverteilung der logarithmischen Normalverteilungsfunktion (siehe Gleichung 4.3) folgt, wird die Verteilungssummenkurve in diesem Netz zu einer *Gerade*, wobei sie durch ihre geometrische Standardabweichung σ_g und durch ihren Modalwert D_{Mod} bzw. Medianwert D_{50} gekennzeichnet ist. Die geometrische Standardabweichung σ_g ist ein Maß für die Steigung der Geraden. Sie läßt sich durch D_{84} und D_{50} oder durch D_{16} berechnen:

$$\sigma_g = D_{84} / D_{50} \text{ oder } \sigma_g = D_{50} / D_{16} \quad (4.4)$$

In dieser Gleichung sind D_{84} und D_{16} die Durchmesser, bei denen die Summenverteilung 84% bzw. 16% beträgt.

Eine andere Möglichkeit zur Ermittlung der geometrischen Standardabweichung ist die Benutzung des Randmaßstabes des logarithmischen Wahrscheinlichkeitsnetzes (siehe Bild 19). Wird die Verteilungsgerade in den Pol verschoben, so kann im Schnittpunkt der Parallelen mit dem inneren Randmaßstab die Standardabweichung σ abgelesen werden und mit der Gleichung:

$$\sigma_g = e^\sigma \quad (4.5)$$

die geometrischen Standardabweichung σ_g berechnet werden [6].

4.1.2 Einfluß der unvollständigen gemessenen Partikelgrößenverteilung auf die Bestimmung des Modalwertes in Verteilungssummen-Kurve

Der eingesetzte Streulichtanalysator PCS 2000 erlaubt einen Meßbereich von 0,3 bis 20 µm. Der Meßbereich wird in Partikelgrößenintervalle eingeteilt. Bei der Messung erhält man Partikelanzahl, die in einem Partikelgrößenintervall gemessen wird, und kann daraus durch Division der Partikelanzahl durch das während einer Messung abgesaugte Luftvolumen die Anzahlkonzentration der Partikel pro Größenintervall berechnen. Zur Darstellung der Meßergebnisse können die Verteilungsdichte-Kurve und die Verteilungssummen-Kurve verwendet werden, um den Modalwert und die Verteilungsbreite zu bestimmen.

In der Realität kann aber passieren, daß wegen des nach unten begrenzten Meßbereiches des Streulichtanalysators z.B. nur die rechte Hälfte der Partikelgrößenverteilung erfaßt wird. Im solchen Fall wird die Bestimmung von Modalwert und Verteilungsbreite erschwert und mit Fehlern behaftet. Um die Fehler dabei abzuschätzen, werden hier Untersuchungen anhand von Beispielen durchgeführt. Von Interesse dabei ist, in welche Richtung sich der Fehler bewegt und in welcher Größenordnung er liegt.

Untersucht wird hier die Partikelgrößenverteilung von Bild 17, wobei die *linke Hälfte* der Verteilung *gelöscht* wird. Dadurch wird die Verteilung unvollständig. Aus der unvollständigen Verteilung wird nun die Häufigkeitssummenkurve der Anzahlverteilung erstellt. Durch Vergleich der originalen und modifizierten Verteilungssummen-Kurve kann man feststellen den Einfluß der unvollständigen Partikelgrößenverteilung auf die Bestimmung des Modalwertes. In Bild 20 und Bild 21 sind die Ergebnisse dargestellt.

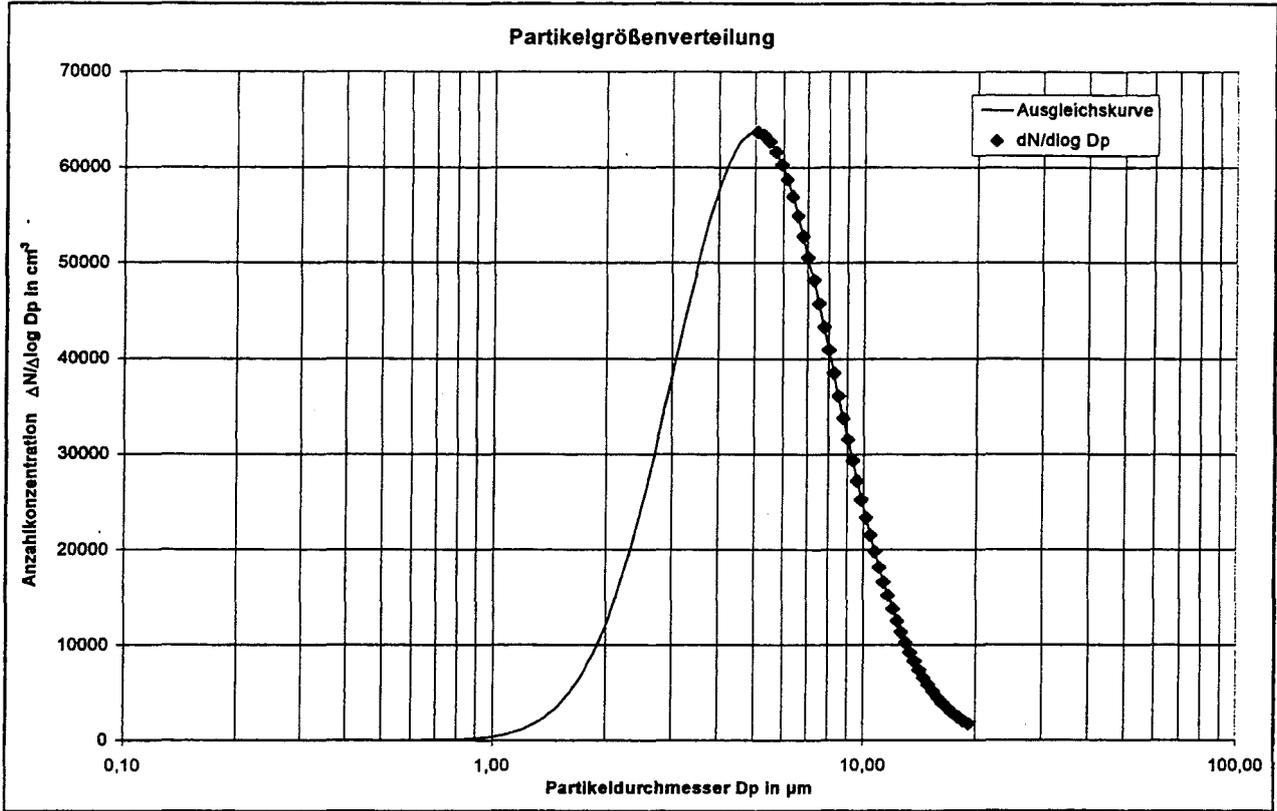


Bild 20. Verteilungsdichte-Kurve mit modifizierter halber Partikelgrößenverteilung

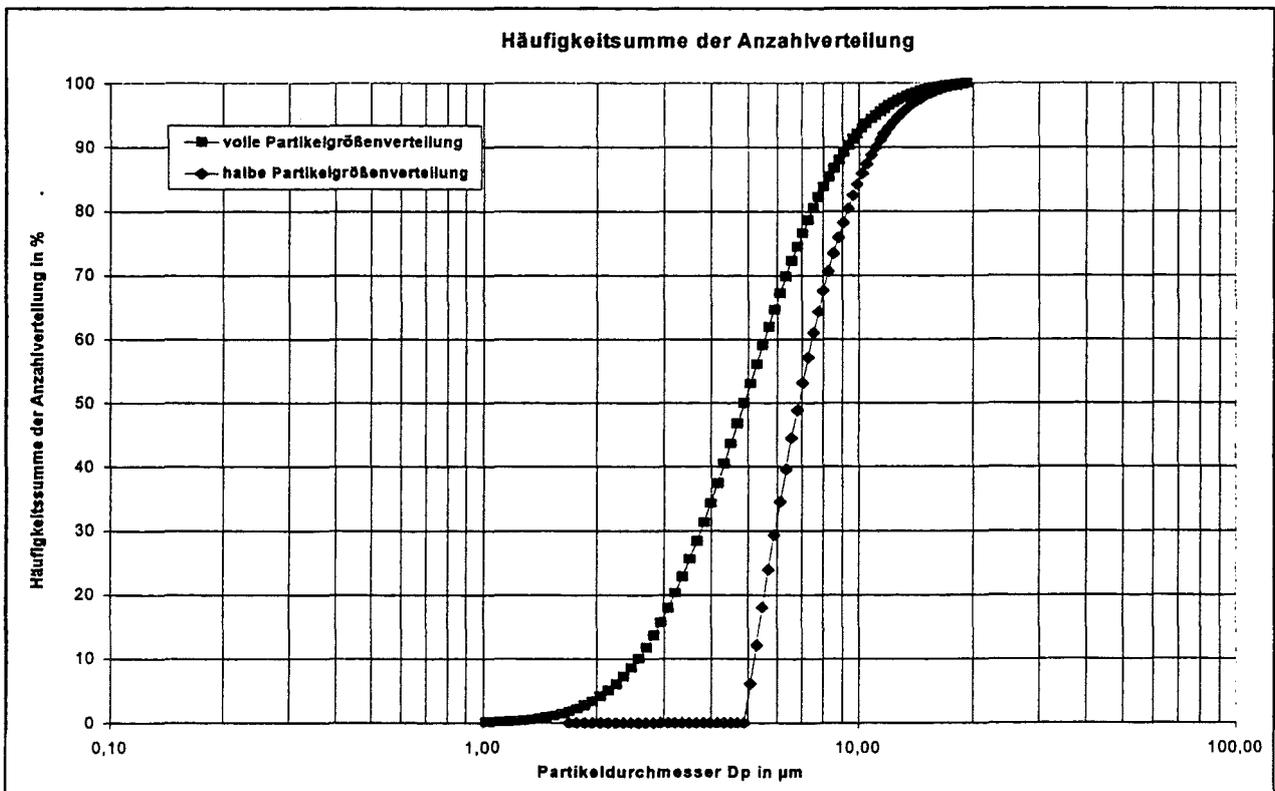


Bild 21. Verteilungssummen-Kurve mit voller und halber Partikelgrößenverteilung

Aus den Bildern 20 und 21 ist die Fehlerwirkung zu erkennen, die bei der Bestimmung des Modalwertes aufgrund der unvollständigen Partikelgrößenverteilung auftritt. Der Einfluß bewirkt in der Weise, daß sich die neue Verteilungssummen-Kurve nach rechts wandert, wenn man aus vollständiger Partikelgrößenverteilung die linke Hälfte wegnimmt. Dadurch wird der Modalwert gegenüber dem der vollständigen Verteilung hin zu größeren Partikeldurchmessern *verschoben*.

Außerdem ist zu sehen, daß die Verteilungssummen-Kurve mit halber Partikelgrößenverteilung etwas steiler geworden ist. D.h. die geometrische Standardabweichung σ_g wird auch etwas kleiner. Allerdings hat diese Änderung wegen der Beziehung in Gleichung 4.5 kaum Einfluß auf die Standardabweichung σ .

Wichtiger zu wissen ist, in welcher Größenordnung sich der Modalwert nach rechts verschiebt. Nach Untersuchungen mit vielen Beispielen stellt sich fest, daß die Modalwert-Verschiebung von der Standardabweichung σ der Verteilung abhängig ist. Die Verschiebung wird groß, wenn große Standardabweichung vorliegt. Bei kleiner Standardabweichung ist die Verschiebung klein. Weist eine Partikelgrößenverteilung eine Standardabweichung σ von ca. 1,1 auf, wird der Modalwert durch den Vorgang um bis zu einem **Faktor 2** nach rechts verschoben.

Zusammenfassend kann man die Ergebnisse dieser Untersuchungen in folgenden Punkten erläutern:

- Wird von einer vollständigen Partikelgrößenverteilung die linke Hälfte weggenommen, verschiebt sich die neue Verteilungssummen-Kurve gegenüber der vollständigen Verteilungssummen-Kurve hin zu größeren Partikeldurchmessern.
- Der Modalwert der unvollständigen Verteilungssummen-Kurve wird dabei um bis zu einem Faktor 2 größer. Die Standardabweichung verändert sich allerdings durch die Änderung kaum.

4.2 Fehlerbetrachtung

Jedes Meßergebnis ist mit Fehlern behaftet. Nach [52] lassen sich zwei Fehlerarten unterscheiden

- die systematischen und
- die zufälligen bzw. statistischen Fehler.

Systematische Fehler

Die systematischen Fehler werden durch ungenaue Meßmethoden oder fehlerhafte Meßinstrumente verursacht. Durch diese Fehlerart werden alle Meßwerte in der gleichen Weise verfälscht. Beispiele hierfür sind Fehler, die durch falsche Kalibrierung eines Meßgerätes hervorgerufen werden. Die systematischen Fehler sind durch vergleichende Anwendung unterschiedlicher Meßmethoden erkennbar und durch eine gute Versuchsvorbereitung und -durchführung vermeidbar.

Während der experimentellen Arbeit traten u. a. folgende vermeidbare systematische Fehler auf:

- Verstopfung des Staubdosierers RBG 1000,
- Verstopfung der Dispergierdüse und
- Verschmutzung der Fenster des Streulichtanalysators.

Um diese Fehler so gering wie möglich zu halten, wurden die Meßgeräte regelmäßig gereinigt und deren Kalibrierung überprüft.

Weitere systematische Fehler bei der Messung mit dem Streulichtanalysator sind der Einfluß von Brechungsindex und Form der untersuchten Partikel. Diese sind bereits bei der Sensitivitätsanalyse des Streulichtmeßgeräts im Abschnitt 3.2.3 behandelt.

Der Einfluß vom Partikelbrechungsindex kann bei der Messung der Flugasche im Trockenzustand vernachlässigt werden. Allerdings werden die Durchmesser der Partikeln vom Meßgerät bei der Messung der Flugasche im feuchten Zustand kleiner angezeigt. Die Abweichung beträgt dabei bis zu +30%.

Der Formeinfluß auf Streuverhalten ist bei Partikeln mit rauher Oberfläche gering. Allerdings werden an Partikeln mit zumindest stückweise glatter Oberfläche schon bei geringer Abweichung von der Kugelform sehr breite Spektren gemessen. In diesem Fall hilft das Verfahren von Umhauer und Bottlinger [34, 35], um den Formeinfluß zu eliminieren und das Auflösungsvermögen des Streulichtmeßgeräts zurückzugewinnen.

Bei der Messung der Flugaschepartikeln in trockener und feuchter Luftströmung schwankte die gemessene Anzahlkonzentration zeitlich. Die deutliche Ursache für diesen systematischen Fehler ist, wie später bewiesen wird, daß der Streulichtanalysator im Trockenzustand nur die Hälfte der Verteilung erfassen kann, während in der höheren relativen Feuchte wegen des Partikelwachstums fast eine vollständige Verteilung erfaßt wird.

Zufällige oder statistische Fehler

Die zufälligen oder statistischen Fehler werden durch unkontrollierbare Störeinflüsse verursacht. Sie verfälschen die Meßergebnisse regellos. Diese Fehler treten bei Mängeln an Meßgeräten durch ungenaue Fertigung, bei Schwankungen der Versuchsbedingungen oder Erschütterungen auf. Zufällige oder statistische Fehler sind unvermeidbar.

Bei der Messung des Wachstums von Flugaschepartikeln ist der Partikeldurchmesser von der relativen Feuchte abhängig. Aufgrund der Schwankungen in der Befeuchtungsanlage und der Meßgenauigkeit des Feuchtefühlers wurde ein Schwanken der relativen Feuchte um ca. ± 3 %-Punkte von der jeweils eingestellten relativen Feuchte beobachtet.

4.3 Eigenschaften der Flugasche

Die hier untersuchte Flugasche stammt aus der Versuchsanlage TAMARA. Die Testanlage TAMARA wird im Forschungszentrum Karlsruhe genutzt, um den Hausmüllverbrennungsprozeß in allen seinen Einzelheiten zu studieren. Die Zusammensetzung der Flugasche läßt sich in zwei Arten einteilen, die wasserlöslichen und wasserunlöslichen Anteile. Tabelle 3 zeigt die elementare Zusammensetzung der verwendeten Flugasche [55].

Tabelle 3. Elementaranalyse der Flugasche [55]

| Element | Unbehandelte Flugasche [g/kg] | Wasserunlöslicher Anteil [g/kg] | Wasserlöslicher Anteil [g/kg] | Massenbilanz [%] |
|---------|-------------------------------------|---------------------------------------|-------------------------------------|---------------------|
| K | 190,65 | 28,32 | 166,5 | 101,7 |
| Cl | 114,44 | 9,95 | 224,1 ¹⁾ | 204,5 |
| Na | | | 77,29 | |
| S | 56,84 | 32,58 | 29,78 ²⁾ | 109,7 |
| Zn | 51,42 | 24,28 | | |
| Pb | 49,75 | 55,53 | | |
| Ca | 31,66 | 44,20 | | |
| Fe | 9,49 | 12,42 | | |
| Sb | 5,44 | 9,43 | | |
| Cu | 3,12 | 4,10 | | |
| Sn | 2,75 | 4,44 | | |
| Cd | 1,75 | 0,16 | | |
| Ti | 1,35 | 1,66 | | |
| Ba | 1,00 | 1,52 | | |
| Rb | 0,60 | 0,04 | | |
| Mn | 0,41 | 0,47 | | |
| Cr | 0,21 | 0,31 | | |
| Ag | 0,14 | 0,07 | | |
| Co | 0,13 | 0,09 | | |
| Sr | 0,11 | 0,13 | | |
| V | 0,09 | 0,10 | | |
| Se | 0,04 | 0,04 | | |
| Mo | 0,03 | 0,04 | | |
| Hg | | | 3,65 | |
| C | 1 ± 0,5 | | | |

¹⁾ mit mehreren unabhängigen Methoden bestimmt

²⁾ als Sulfat

Die Flugasche enthält auch Poren. An der Partikeloberfläche haben die Poren einen Anteil von 20-30 %. Die Dichte der Flugasche beträgt $0,764 \text{ g/cm}^3$ [55]. Damit bei jeder Messung eine möglichst gleichbleibende Partikelgrößenverteilung vorliegt, wird die Flugasche gesichtet. Die groben Partikeln werden dadurch abgeschieden. Bild 22 zeigt die elektronenmikroskopische Aufnahme der verwendeten Flugasche.

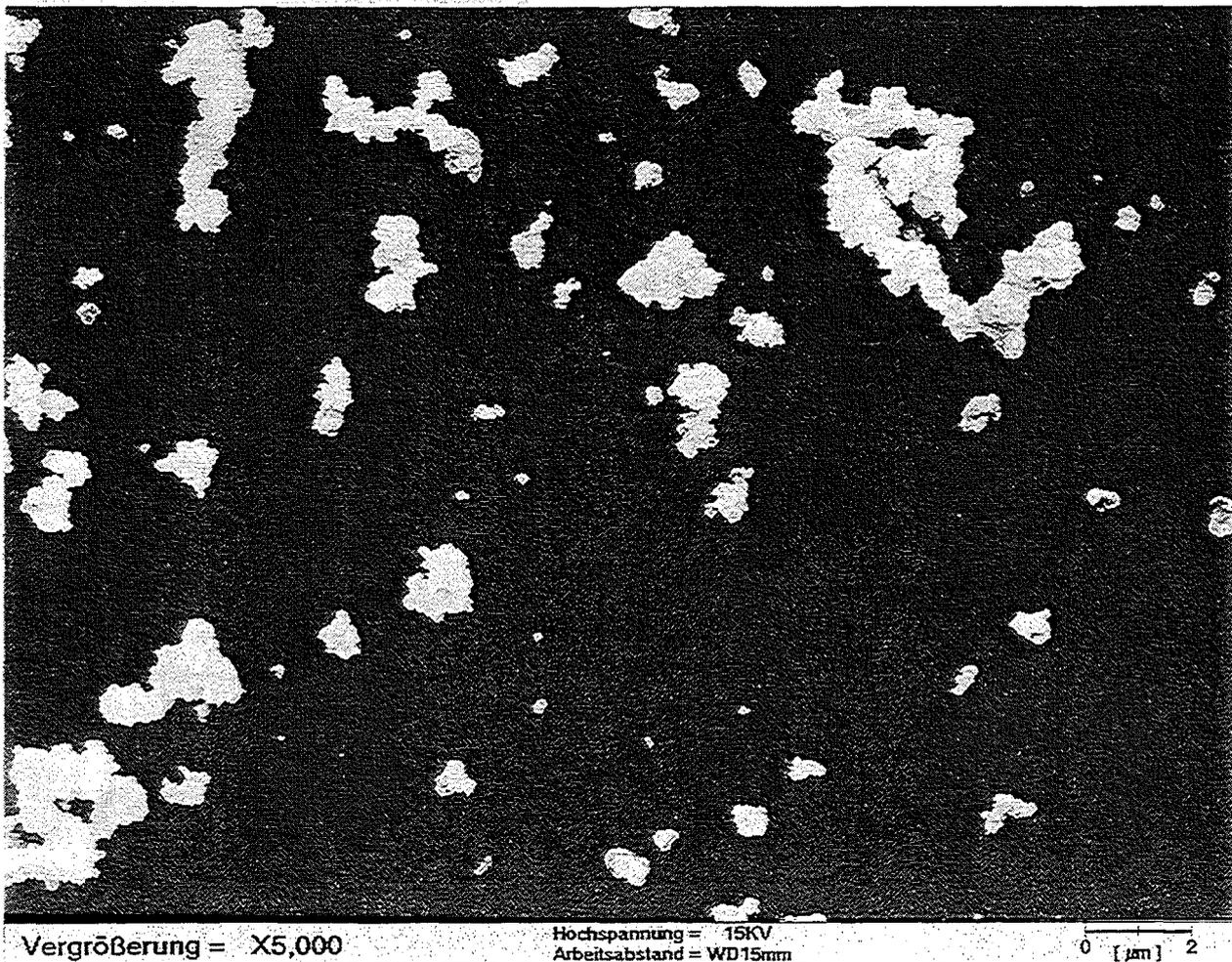


Bild 22. Elektronenmikroskopische Aufnahme von Flugaschepartikeln

4.4 Versuchsvorbereitende Messungen

4.4.1 Aufbereitung der Flugasche

Untersucht wurde der Einfluß von relativen Feuchte auf die Größe von Flugaschepartikeln. Bei allen Versuchen wurde die gesichtete TAMARA-Flugasche verwendet. Dazu wird die Flugasche mit einem Staubdosierer in die Befeuchtungskammer dispergiert. Vor der Dispergierung wird die Flugasche aufbereitet. Sie wird in einem Trockner vorgewärmt, um die Desagglomeration zu fördern. Danach wird die Flugasche nach und nach in den Feststoffbehälter vom RBG eingefüllt und dabei jedesmal durch Stopfen leicht verdichtet, damit sich die Stopfdichte in der Feststoffprobe ausgleicht. Bleibt nach der Dispergierung noch Restflugasche, darf diese nicht mehr verwendet werden. Somit kann eine ungefähr konstante Stopfdichte erreicht werden.

4.4.2 Ermittlung der Volumenstromkurve des Feststoffdispergierers RBG 1000

Der Staubdosierer zur Dispergierung der Flugasche wird mit gefilterter Versorgungsluft aus der Netzleitung angetrieben. Über ein Druckmindererventil kann mit Hilfe einer Volumenstromkurve der gewünschte Luftvolumenstrom eingestellt werden (siehe Bild 5). Die vom Hersteller gelieferte Volumenstromkurve gilt allerdings nur für den im Werk installierten Dispergierkopf. Wird ein Dispergierkopfwechsel durchgeführt, so muß die entsprechende Volumenstromkurve überprüft bzw. neu erstellt werden. Im Bild 23 ist die Versuchsanordnung zur Ermittlung der Volumenstromkurve dargestellt.

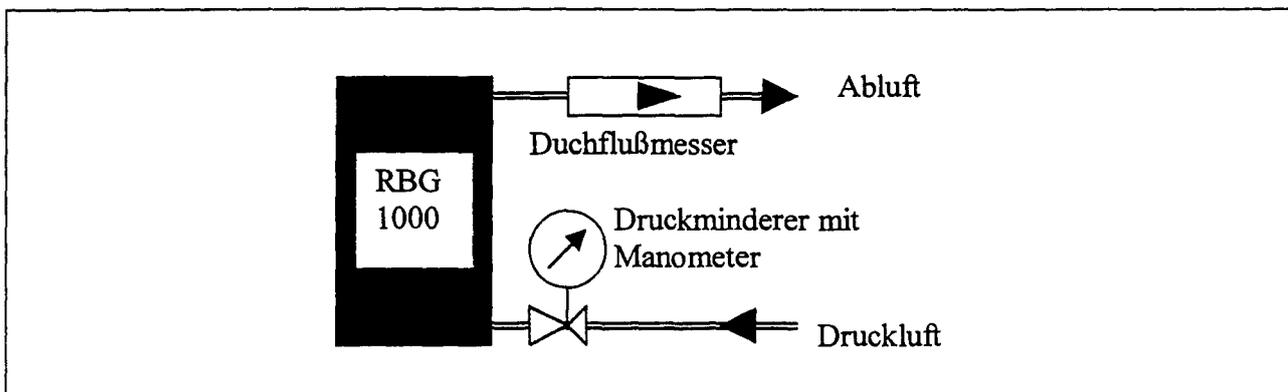


Bild 23. Versuchsanordnung zur Bestimmung des Volumenstroms in Abhängigkeit vom Vordruck

Für die Dispergierung der Flugasche mit dem RBG 1000 wurde in allen Messungen der Dispergierkopf A verwendet. Mit der Versuchsanordnung im Bild 23 erfolgt die Ermittlung der Volumenstromkurve für diesen Dispergierkopf. Dazu wird die Druckluftversorgung über ein Druckmindererventil an den Druckluftanschluß des Geräts angeschlossen. Wird die Versorgungsluft in das Gerät eingeleitet, kann man den Luftvolumenstrom mit dem Druckmindererventil einstellen. Der Volumenstrom wird direkt nach dem Austritt mit einem Durchflußmesser gemessen. Wiederholt man diesen Einstellvorgang für verschiedene Volumenströme, so erhält man schließlich eine Volumenstromkurve.

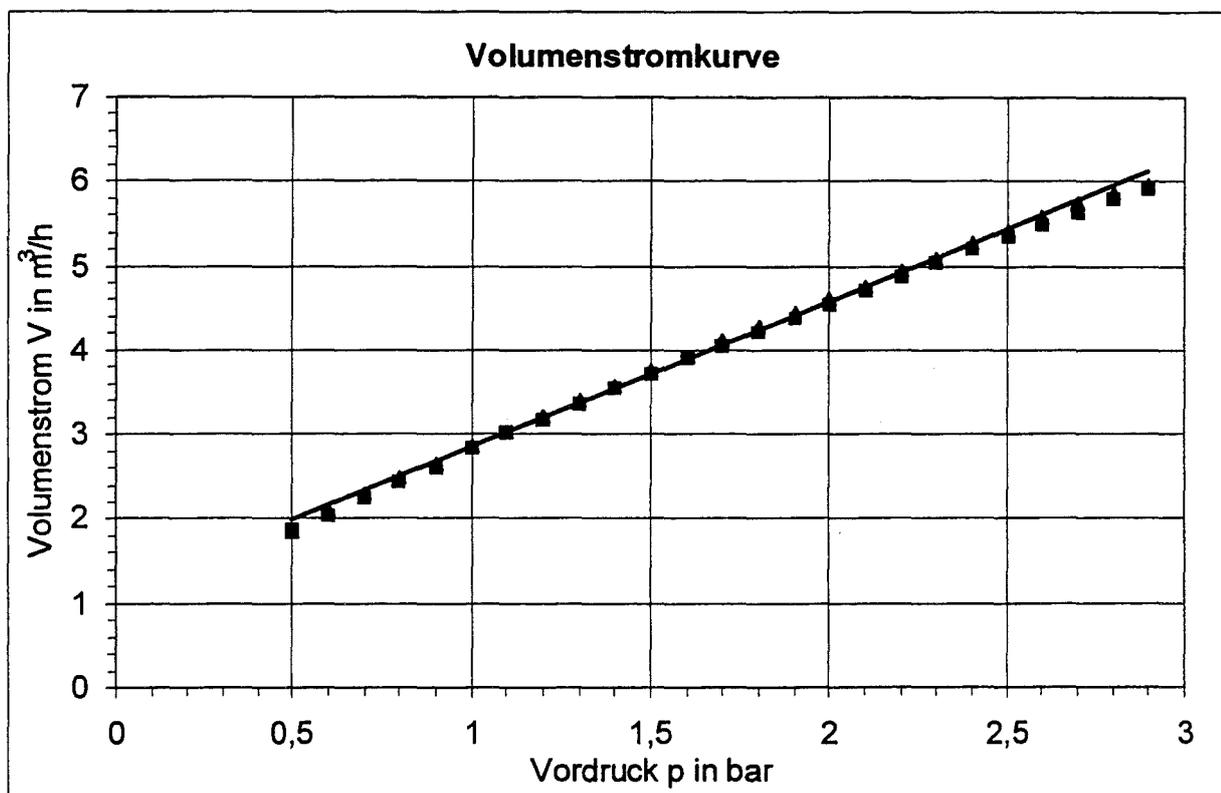


Bild 24. Volumenstromkurve für RBG 1000 mit dem Dispergierkopf A

4.4.3 Kalibrierung des Streulichtanalysators

Der Streulichtanalysator besitzt zwei getrennte Systeme, die das gestreute Licht detektieren und in ein Spannungssignal umwandeln. Die Höhe des Spannungssignals ist ein Maß für die Partikelgröße, während die Anzahl der Impulse der Partikelkonzentration proportional ist. Die Streulichtimpulse werden nach ihrer Höhe geordnet und in verschiedenen Kanälen eines Mehrkanal-Analysator abgespeichert. Die eigentlichen Partikeldurchmesser ergeben sich dann durch Umrechnung anhand von Eichkurve, die im Rechner der Streulichtmeßeinrichtung gespeichert ist.

Die Kalibrierung der Meßgeräte erfolgte entsprechend der VDI-Richtlinie [47]. Zur Kalibrierung der Meßgeräte wird eine Latexsuspension dispergiert. Die Suspension enthält feine Kugeln aus Polyamid, die einen genau definierten Durchmesser besitzen. Diese Latices gibt es in verschiedenen Größen. Der Hersteller liefert die Latexsuspensionen in kleinen Flaschen zu je ca. 50 ml. Dabei sind die Partikelanzahlkonzentrationen so hoch, daß die Suspensionen verdünnt werden. Die VDI-Richtlinie [47] empfiehlt eine Partikelanzahlkonzentration bis zu ca. 10^8 cm^{-3} , um beim Zerstäuben der Latexsuspension die Koagulation in Grenzen zu halten. Die Verdünnung erfolgt mit bidestilliertem Wasser, damit Verunreinigungen vermieden werden.

Damit der Streulichtanalysator ein fehlerfreies Meßergebnis liefert, muß die von beiden Systemen bestimmte Partikelgröße mit der vorgegebenen übereinstimmen. Ist dies nicht der Fall, wird die elektrische Spannung, die am Photomultiplier anliegt, um die Differenz zwischen Soll- und Istwert reguliert. Danach wird die Messung mit der neuen Einstellung wiederholt. Stimmen die von beiden Systemen gemessenen Partikeldurchmesser mit dem Sollwert überein, ist die Kalibrierung abgeschlossen. Bild 25. liefert die typische Anzahlverteilungsdichte, die beim Messen der Aerosole aus Latexsuspensionen entstehen.

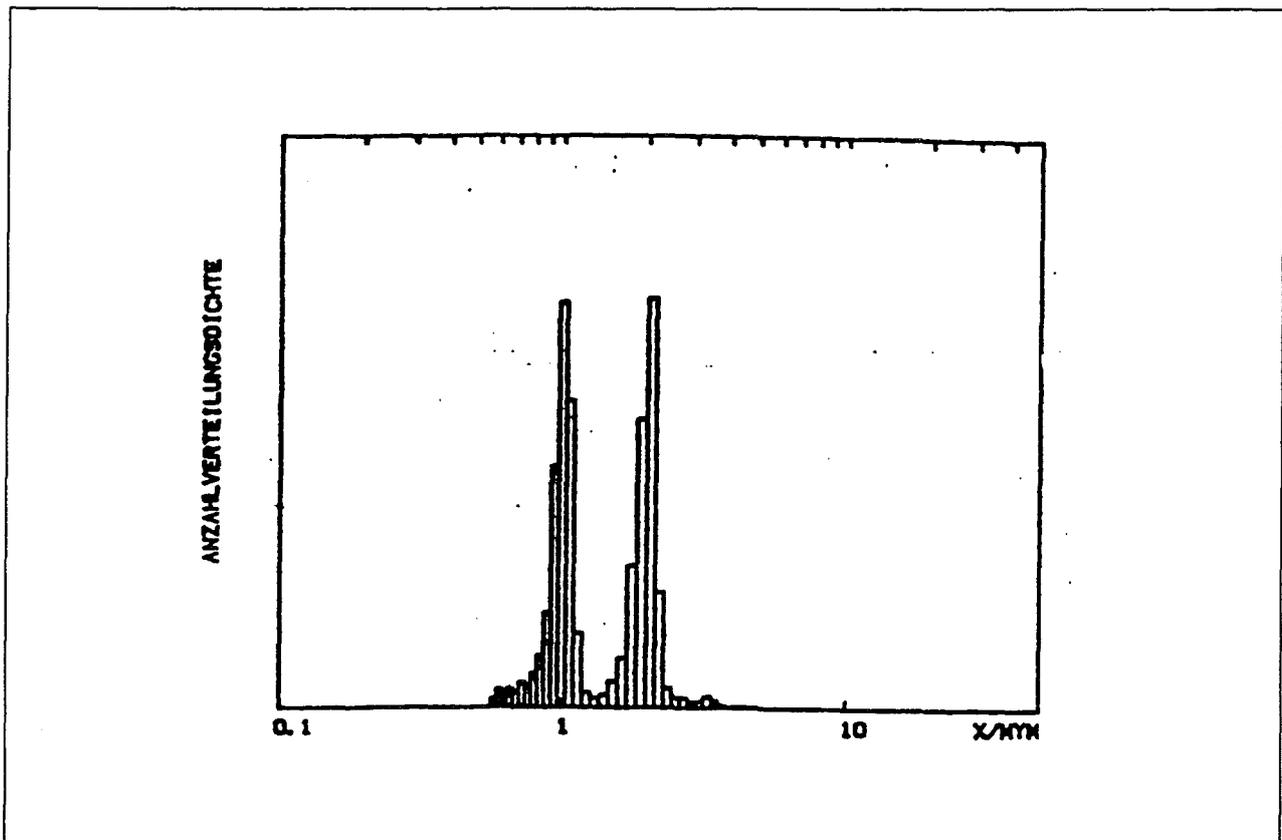


Bild 25. Anzahlverteilungsdichte eines Aerosols aus zwei Latexsuspensionen [27]

In der Tabelle 4 sind die Meßergebnisse der Kalibrierung zusammengefaßt und in Bild 26 graphisch dargestellt.

Tabelle 4. Mit dem Streulichtanalysator gemessene Partikeldurchmesser

| <i>Partikeldurchmesser der Latices</i> | <i>gemessene Partikeldurchmesser</i> | <i>relativer Fehler</i> |
|--|--|-----------------------------|
| | | [%] |
| 0,503 μm | 0,488 μm | - 3,0 |
| 0,701 μm | 0,717 μm | + 2,2 |
| 2,013 μm | 2,142 μm | + 6,4 |

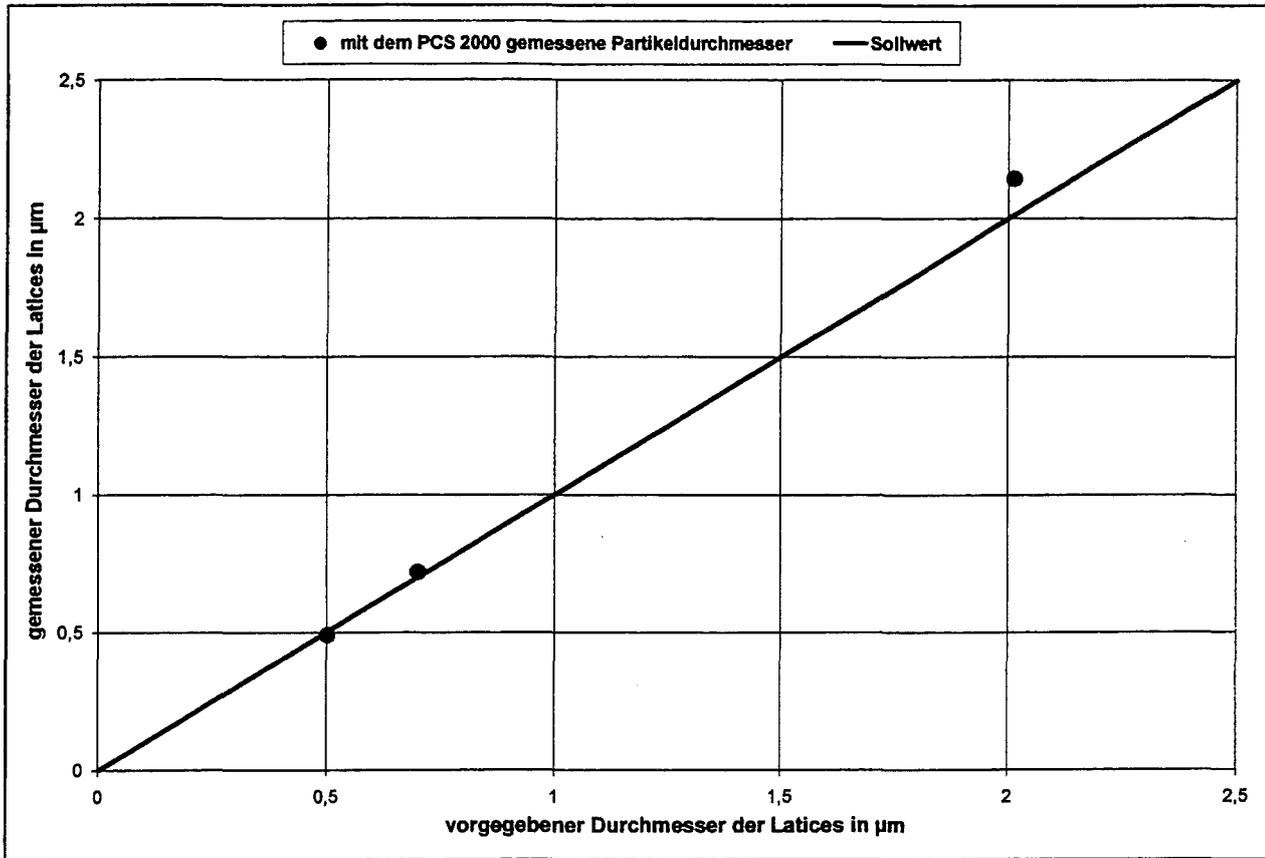


Bild 26. Darstellung der mit dem Streulichtanalysator gemessenen Partikeldurchmesser
(0,503 µm, 0,701 µm und 2,013 µm)

4.4.4 Filtermessungen zur Bestimmung der Massenkonzentration an der Probenahmestelle

Bei der Dispergierung der Flugasche mit dem RBG 1000 ist es möglich die Massenkonzentration der Aerosole vorauszuberechnen. Bei vorgegebener Stopfdichte (Materialeigenschaft) kann über die freien Parameter Vorschubgeschwindigkeit, Luftvolumenstrom und Durchmesser des Stoffbehälters die Massenkonzentration in weiten Grenzen variiert und definiert eingestellt werden (Vergleich 3.1.2.2). Nach der Dispergierung gelangen die Aerosole über eine Dispergierdüse in die Mischkammer und erreichen die Probenahmestelle nach ca. 11 Sekunden Aufenthaltszeit in der Wachstumstrecke.

Wie groß die Massenkonzentration der Aerosole an der Probenahmestelle wiedergefunden wird, wird in folgenden Messungen untersucht. Dazu werden die Flugaschen in verschiedenen Massenkonzentrationen mit dem Feststoffdispergierer RBG 1000 dispergiert. Die in diesem Luftstrom enthaltenen Flugaschen wurden auf einem Planfilter abgeschieden. Bezieht man die Beladung des Filters auf das abgesaugte Luftvolumen, erhält man die Massenkonzentration der Flugasche im Luftstrom. Da die Massenkonzentration vom Feststoffdispergierer vorausberechnet werden kann, stellt die Differenz der beiden Massenkonzentrationen die Verluste seit der Dispergierung bis zur Probenahmestelle dar.

Die partikelhaltige Luft wird, wie in Bild 27 zu sehen ist, von einem Gasprobenehmer abgesaugt und durch einen Planfilter (Firma Millipore) mit einem Porendurchmesser von $0,2 \mu\text{m}$ geleitet, so daß die Partikel auf dem Filter abgeschieden werden. Mit dem Gasprobenehmer wird der abgesaugte Volumenstrom eingestellt und mit einer Gasuhr gemessen.

Beim Dispergieren laden sich die Partikeln elektrostatisch auf. Die Ladung hängt vom Material des Feststoffes und der Bürste ab [21]. Einige Maßnahmen gegen das Aufladen können getroffen werden, indem das Plexiglasrohr mit Drahtgewebe umwickelt wird und Metallteile am Dosierer und an der Mischkammer geerdet werden. Die Wirksamkeit dieser Maßnahmen lassen sich mit den gravimetrischen Messungen feststellen, in dem die Ergebnisse der Filtermessungen ohne und mit den Maßnahmen verglichen werden.

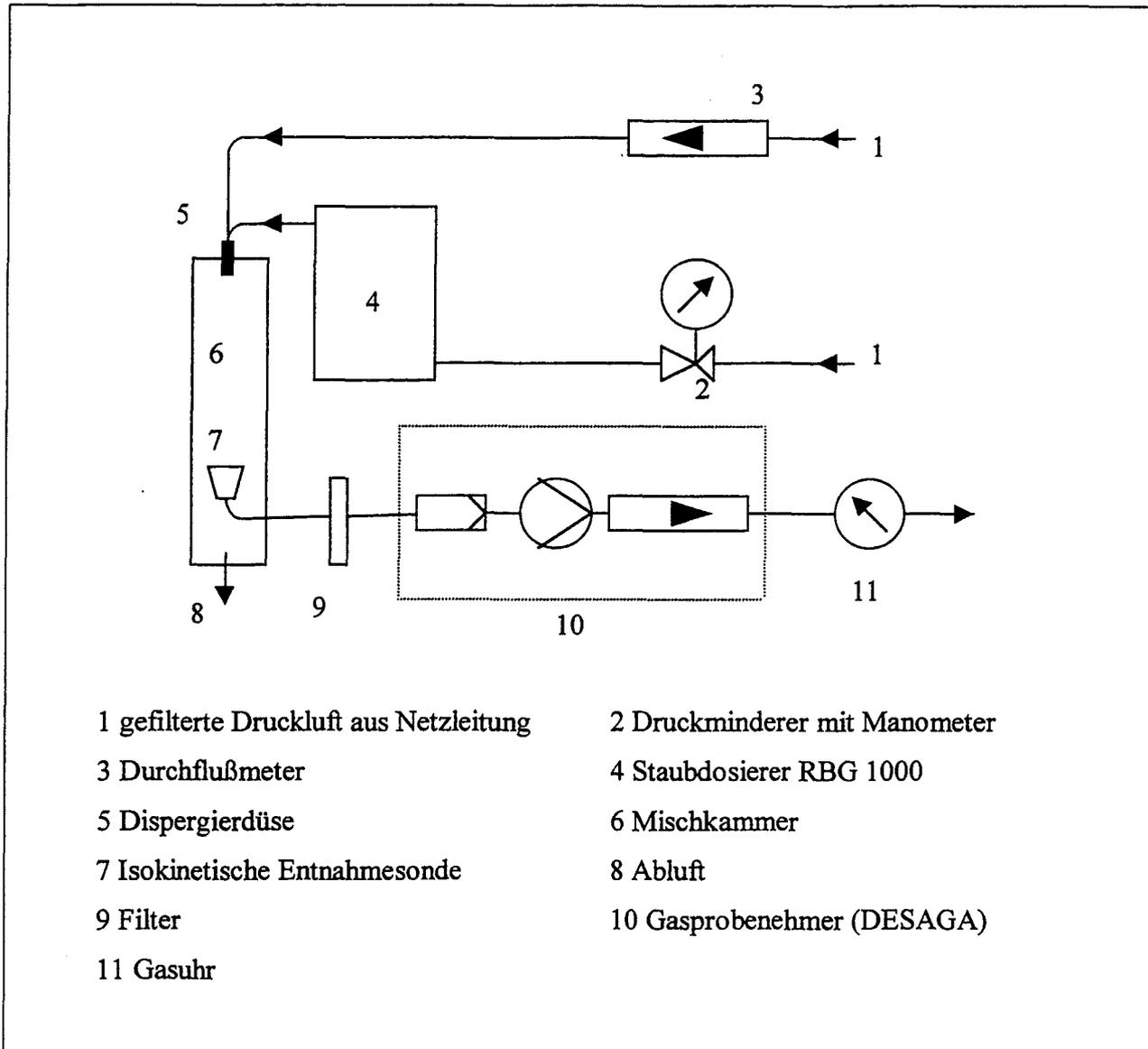


Bild 27. Versuchsaufbau für die Filtermessungen

In der ersten Meßreihe wurden Messungen durchgeführt, um die Wirksamkeit der Maßnahmen gegen das elektrostatische Aufladen festzustellen. Für diese Versuche werden Aerosole mit einer vom Dosierer bestimmten Massenkonzentration von 200 mg/m^3 erzeugt. Eine Ausbeute von ca. 55 % wurde bei den Messungen ohne Maßnahmen gegen das Aufladen festgestellt. Eine größere Ausbeute (ca. 70 %) ist festzustellen, wenn man das Plexiglasrohr mit Drahtgewebe umwickelt und die Metallteile am Dosierer und am Plexiglasrohr erdet. In der Tabelle 5 sind die Ergebnisse dieser Messungen aufgeführt.

Tabelle 5. Versuchsergebnisse der Filtermessungen mit und ohne Drahtgewebe

| Berechnete Massen- konzentration | gemessene Massen- konzentration | Ausbeute | Maßnahme |
|-------------------------------------|------------------------------------|----------|-------------|
| [mg/m ³] | [mg/m ³] | [%] | - |
| | 107,7 | 53,9 | Keine |
| | 108,5 | 54,3 | Keine |
| 200 | 110,1 | 55,1 | Keine |
| | 146,1 | 73,1 | Drahtgewebe |
| | 131,9 | 65,9 | Drahtgewebe |
| | 149,3 | 74,5 | Drahtgewebe |

Tabelle 6. Versuchsergebnisse der Filtermessungen bei verschiedenen Massenkonzentrationen

| berechnete Massen- konzentration | gemessene Massen- konzentration | Ausbeute | Maßnahme |
|-------------------------------------|------------------------------------|----------|-------------|
| [mg/m ³] | [mg/m ³] | [%] | - |
| 200 | 142,4 | 71,2 | Drahtgewebe |
| 500 | 283,6 | 56,7 | Drahtgewebe |
| 1000 | 521,7 | 52,2 | Drahtgewebe |

In der Tabelle 6 sind die Versuchsergebnisse der Filtermessungen bei verschiedenen Massenkonzentrationen dargestellt. Die Tabelle zeigt, daß mit abnehmender Massenkonzentration vom Dosierer die gemessene Massenkonzentration in bezug auf die erwartete ansteigt. Eine Erklärung hierfür könnte sein, daß der Dosierer bei niedriger Massenkonzentration etwas zu viel Flugasche dispergiert als die Berechnung zeigt.

Die entstehende Verluste lassen sich außerdem damit erklären, daß durch den Sprühvorgang der Dispergierdüse Partikel an der Wand des Plexiglasrohres abgeschieden werden und, daß die elektrostatische Aufladung trotz der Erdung noch nicht ganz entladen ist. Dadurch wird die Partikel an der Wand des Plexiglasrohres abgeschieden. Trotz der Verluste ist die Anzahlkonzentration der Partikel im Luftstrom ausreichend, um aussagefähige Meßergebnisse zu erhalten. Für die weiteren Messungen werden die hier beschriebenen Maßnahmen gegen das elektrostatische Aufladen weiter verwendet.

4.5 Auswertung der Partikelgrößenverteilung der Flugasche im trockenen Zustand

Nach Abschluß der vorbereitenden Experimente fanden die Messungen der Partikelgrößenverteilung der Flugasche statt. Zunächst wird die Partikelgrößenverteilung der Flugasche im trockenen Zustand untersucht. Dazu wurde die Flugasche mit dem Feststoffdispergierer RBG 1000 dispergiert. Die Anfangsmassenkonzentration der Aerosole betrug in der ersten Meßreihe ca. 200 mg/m^3 . Nach der Dispergierung strömt der partikelhaltige Gasstrom mit sehr niedriger relativer Feuchte bis zur Probennahmesonde weiter. Dort wird ein Teilstrom der Gasströmung isokinetisch entnommen und in den Partikelanalysator geleitet. Man erhält daraus die Partikelgrößenverteilung der Flugasche im Trockenzustand. Bild 28 stellt die gemessene Verteilung der Flugaschepartikel im trockenen Zustand dar.

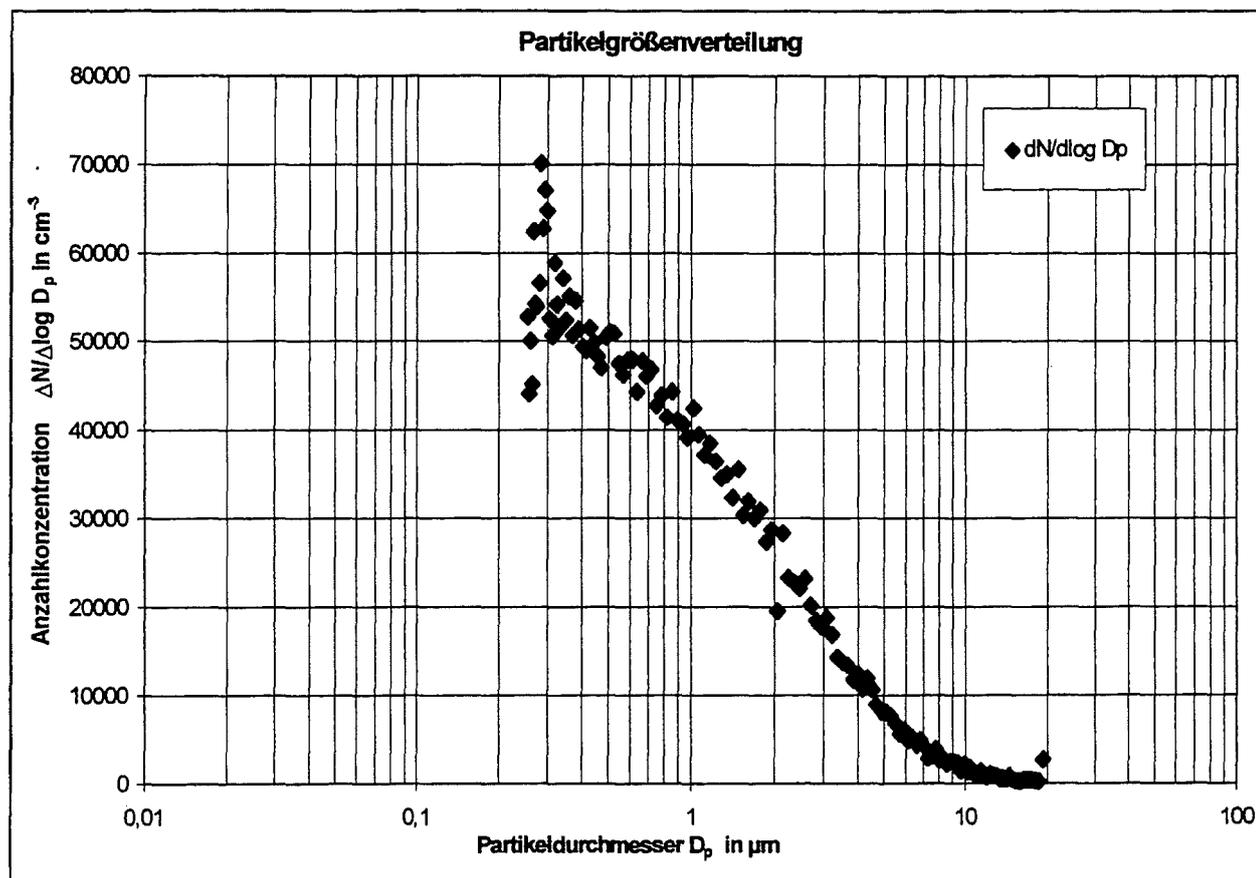


Bild 28. Partikelgrößenverteilung der Flugasche im Trockenzustand in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers

Wie schon erwähnt wurde, hat das Streulichtmeßgerät einen Meßbereich von 0,3 bis 20 μm . Partikel, die kleiner als 0,3 μm sind, können vom Gerät nicht erfaßt werden. Im Bild 28 ist dies der Fall. Dort wurde nur der rechte Teil der Verteilung vom Streulichtanalysator erfaßt. Im Abschnitt 5.1 wird gezeigt, daß die hier erfaßte Verteilung ca. die Hälfte von der gesamten Partikelgrößenverteilung ist. D.h. fast die Hälfte von den Flugaschepartikeln ist kleiner als 0,3 μm .

Zur Bestimmung des Modalwertes kann man auf die gemessenen Meßpunkte eine Ausgleichskurve legen oder die Verteilungssummen-Kurve bilden. Allerdings bei unvollständigen Verteilungen wird die Bestimmung des Modalwertes mit Fehlern behaftet. Im vorherigen Abschnitt 4.1.2 wurde dieses Problem bereits erörtert und wurden die Tendenz sowie die Größe der Fehler untersucht.

Im Bild 29 ist eine Ausgleichskurve auf die Meßpunkte der Verteilungsdichte-Kurve der Flugaschepartikeln gelegt worden. Aus dieser Anpassung ergeben sich eine Standardabweichung von ca. 1,08 und ein Modalwert $D_{\text{Mod,A}}$ von ca. 0,35 μm . Bildet man aus der Verteilungsdichte-Kurve die Verteilungssummen-Kurve, erhält man allerdings ein Modalwert $D_{\text{Mod,V}}$ von ca. 0,75 μm (Bild 30). Nach Abschnitt 4.1.2 weiß man aber, daß der Modalwert $D_{\text{Mod,V}}$ von 0,75 μm mit Fehler behaftet ist, da nur die rechte halbe Verteilung vorliegt. Hätte man hier die vollständige Verteilung, würde der wahre Modalwert $D_{\text{Mod,K}}$ ca. 0,37 μm betragen. Der wahre Modalwert ist also ca. um Faktor 2 kleiner, da in diesem Fall die Standardabweichung 1,08 beträgt (vgl. Abschnitt 4.1.2).

Als weiterer Vergleich der Modalwertbestimmung werden rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von Flugaschepartikeln durchgeführt. REM-Aufnahme gilt als Standardvergleich bei der Ermittlung von Partikelgrößen. Bild 22 und 31 zeigen die REM-Aufnahme der Flugaschepartikeln und deren Auswertung. Die Auswertung der REM-Aufnahme liefert ein Modalwert $D_{\text{Mod,REM}}$ von ca. 0,365 μm . Somit liegen die vorherigen ermittelten Werten, die durch Anpassung der Ausgleichskurve ($D_{\text{Mod,A}} \approx 0,35 \mu\text{m}$) und durch Korrektur des Modalwertes ($D_{\text{Mod,K}} \approx 0,37 \mu\text{m}$) bestimmt sind, nicht weit vom Ergebnis der REM-Auswertung. Bild 32 zeigt diese in einer Übersicht.

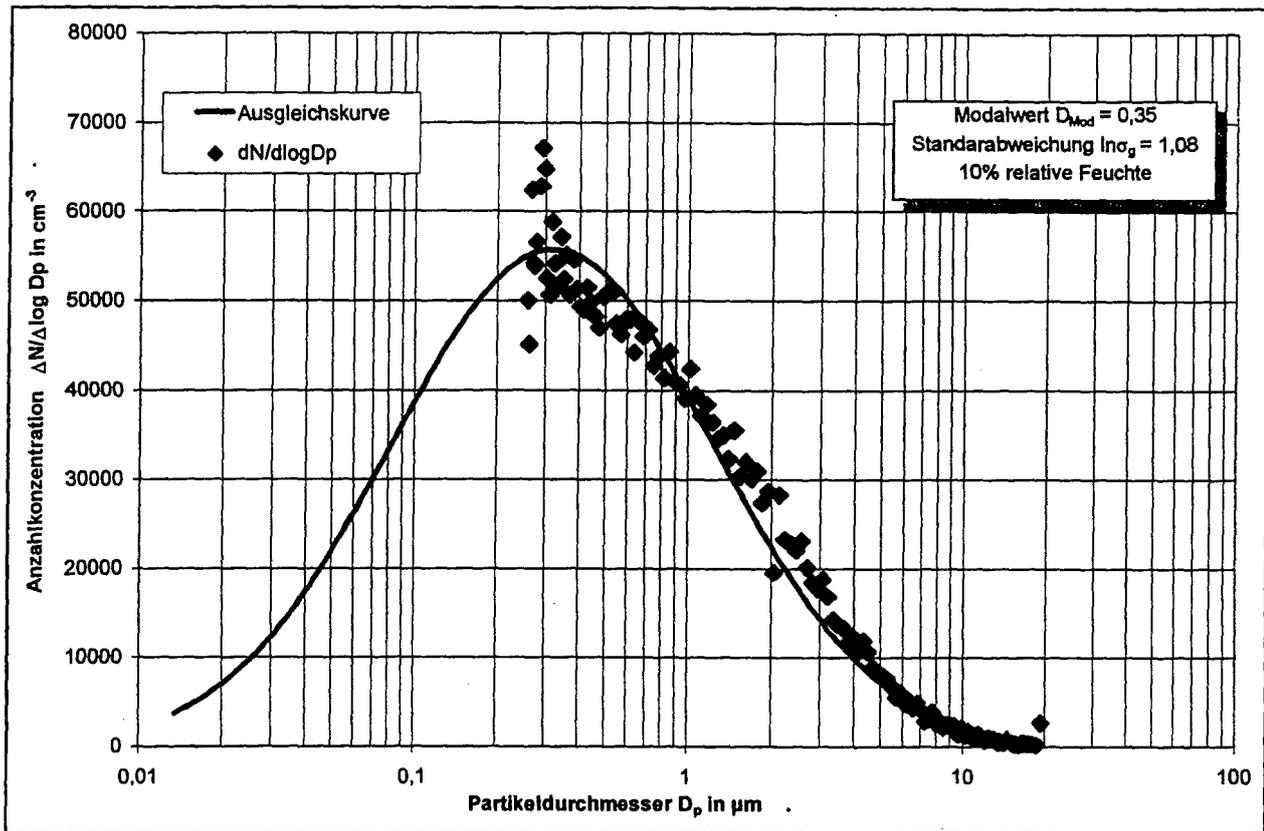


Bild 29. Verteilungsdichte-Kurve der Flugaschepartikeln und die Ausgleichskurve

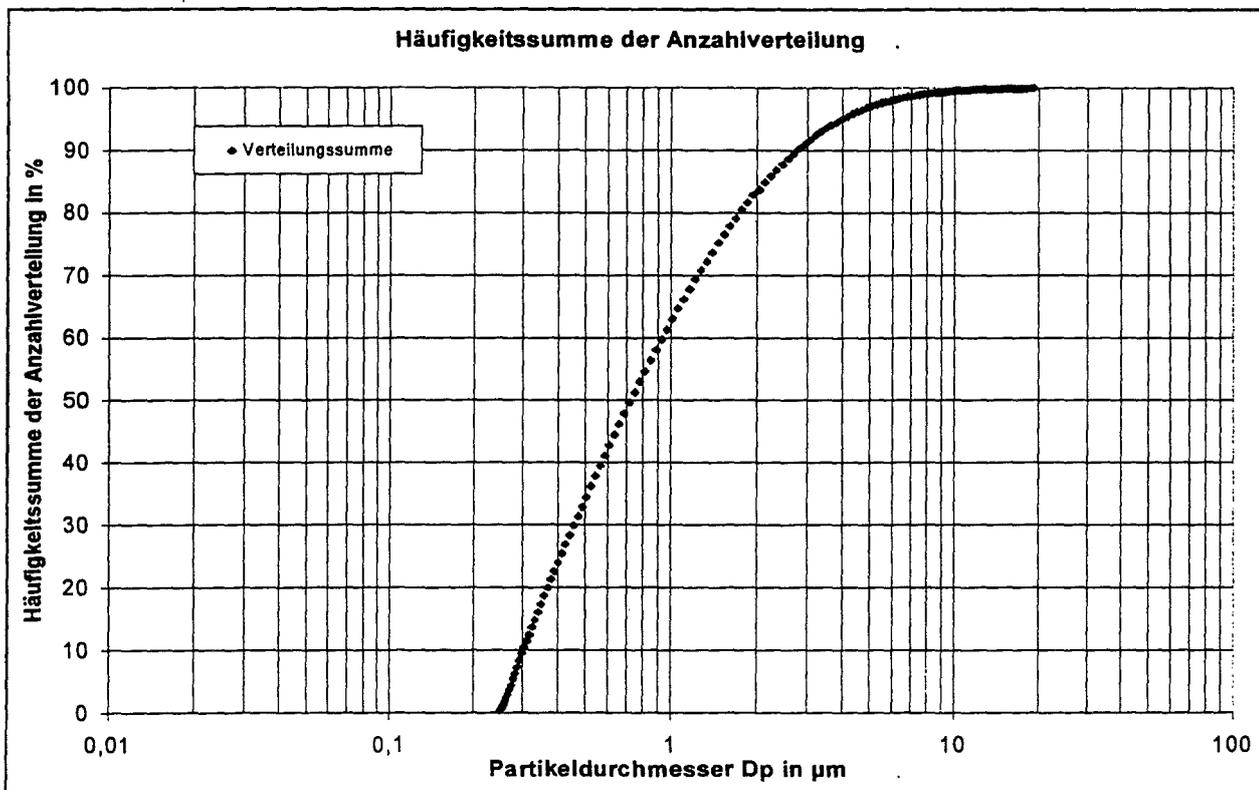


Bild 30. Verteilungssummen-Kurve der Flugaschepartikeln

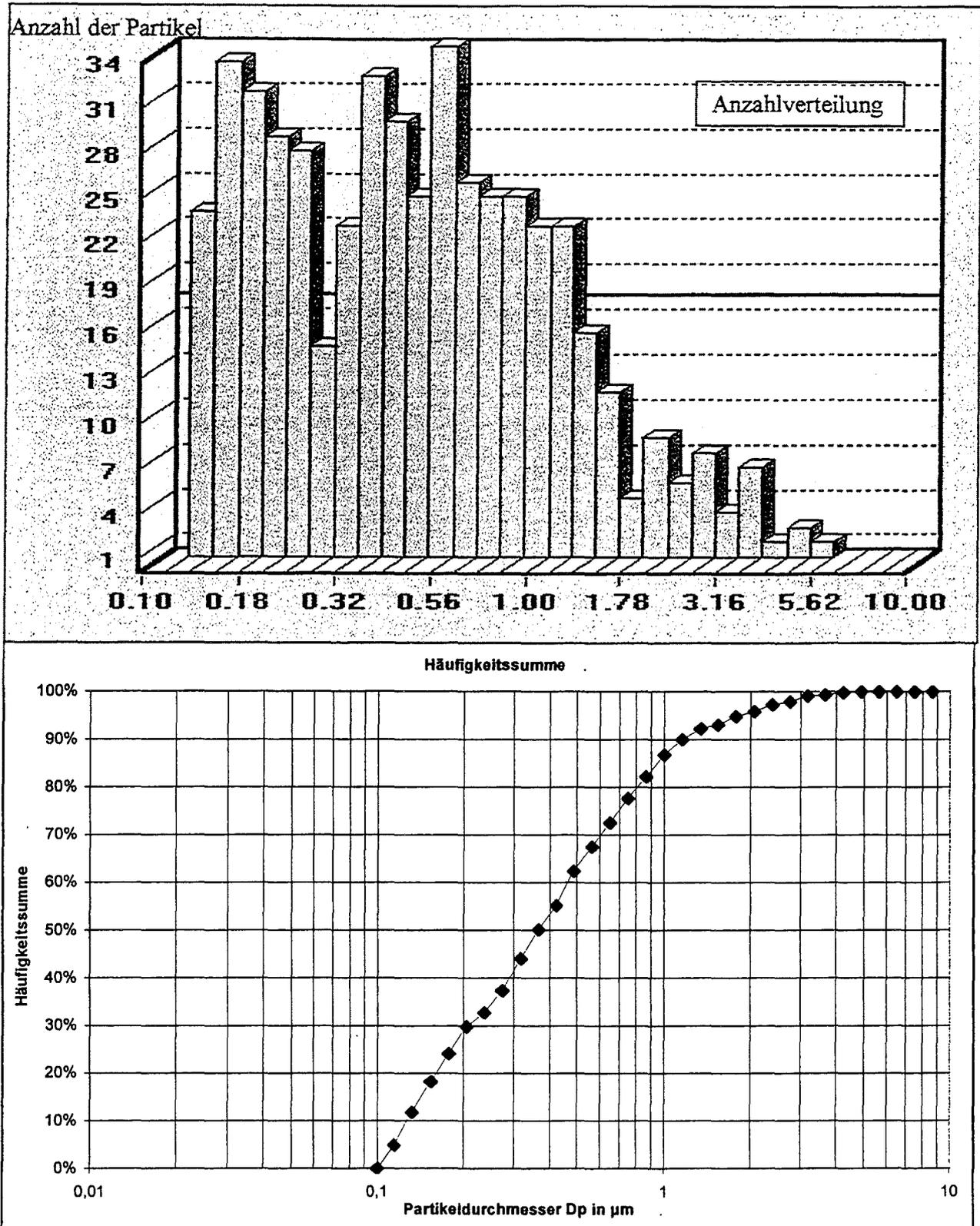
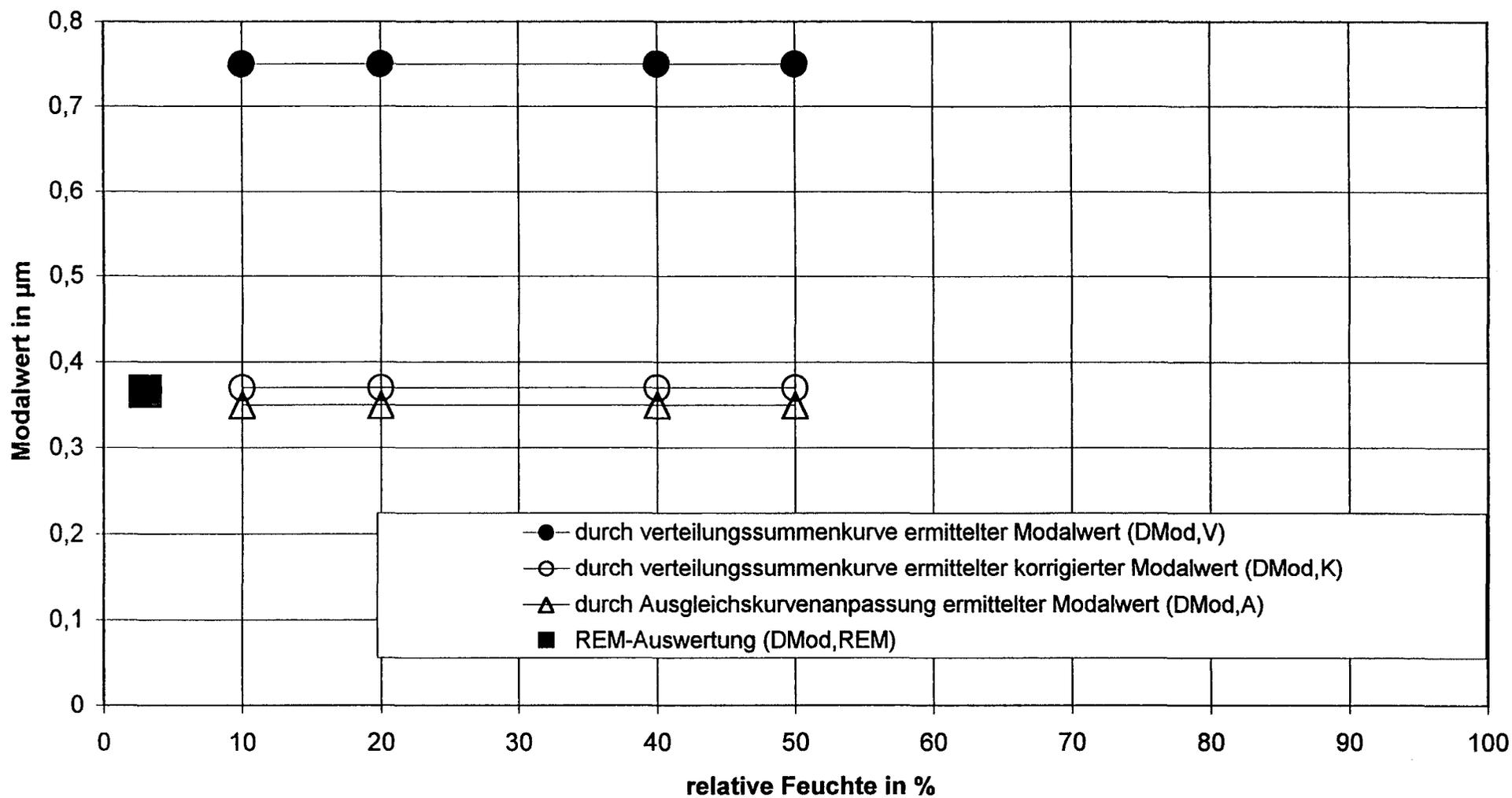


Bild 31. Die Auswertung der REM-Aufnahme ($D_{\text{Mod,REM}} = 0,365 \mu\text{m}$)

Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger relativer Feuchte



- 75 -

Bild 32. Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger relativer Feuchte

4.6 Auswertung der Partikelgrößenverteilung der Flugasche im feuchten Zustand

4.6.1 Wachstum der Flugaschepartikel durch Kondensation

Nach Abschluß der Messungen der Partikelgrößenverteilung der Flugasche bei der niedrigen relativen Feuchte wurden Versuche des Größenwachstums und der Änderung der Größenverteilung der Flugasche durch Kondensation bei Erhöhung der relativen Feuchte durchgeführt. Dazu wird der Gasstrom nach dem Verlassen der Dispergierdüse durch Zugabe gesättigter partikelfreier Luft befeuchtet. Der befeuchtete partikelhaltige Gasstrom verbleibt ca. 11 Sekunden in der Wachstumsstrecke. Ein Teilstrom des Gases wird mit der Probennahmesonde isokinetisch entnommen. Mit Hilfe des Streulichtmeßgeräts PCS 2000 werden die Anzahlkonzentration und die Partikelgrößenverteilung bestimmt.

Um eine Aussage über den Einfluß der relativen Feuchte auf das Wachstum von Flugaschepartikeln zu ermöglichen, wurde die relative Feuchte stufenweise auf ca. 30%, 60%, 75%, 85% und 95% erhöht. Durch das Vergleichen der Meßergebnisse im trockenen und feuchten Zustand konnte dieser Einfluß untersucht werden.

Zur Bestimmung von Modalwert und Verteilungsbreite werden weiterhin die Methoden der Anpassung der Ausgleichskurve auf die gemessenen Meßpunkte und der Bildung der Verteilungssummen-Kurve, wie diese im Abschnitt 4.1.1 und 4.1.2 beschrieben sind, angewandt. In der Tabelle 7 ist die Auswertung der Meßergebnisse bei einer Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m³ aufgeführt. Die Tabelle 7 enthält die relative Feuchte, die Modalwerte, die Gesamtanzahlkonzentration und die Standardabweichung bei jeder Messung. Zur Veranschaulichung wird die Auswertung der Ergebnisse im Bild 33 nochmals dargestellt.

Im Bild 33 sind die festgestellten Fehler zwischen $D_{\text{Mod,V}}$ und $D_{\text{Mod,A}}$, die bei der Bestimmung der Modalwerte von unvollständigen Verteilungen auftreten, zu erkennen. Diese wurde bereits im Abschnitt 4.5 behandelt. Im Bereich der niedrigen relativen Feuchte liegen die Modalwerte $D_{\text{Mod,V}}$ weit von den Modalwerten $D_{\text{Mod,A}}$, da hier die gemessenen Verteilungen nicht vollständig vom Partikelanalysator erfaßt wurden. Durch Korrektur nach der Methode im Abschnitt 4.1.2 werden die wahren Modalwerte $D_{\text{Mod,K}}$, die bei vollständigen Verteilungen vorliegen würden, zurückgewonnen.

Erhöht man die relative Feuchte des flugaschenbeladenen Gasstromes weiter, werden die Flugaschepartikeln durch die Wasserdampfkondensation wachsen. Die feinen Partikeln, die vorher kleiner als $0,3 \mu\text{m}$ sind, vergrößern sich und werden nun vom Streulichtanalysator erfaßt. Die Partikelgrößenverteilungen verschieben sich hin zu größeren Partikeldurchmessern. Somit werden fast vollständige Partikelgrößenverteilungen gemessen. Die Modalwerte $D_{\text{Mod,V}}$ müssen in diesem Bereich mit den Modalwerten $D_{\text{Mod,A}}$ ungefähr übereinstimmen. Im Bild 33 ist dies zu erkennen. Im Anhang sind die Verteilungsdichte-Kurve der Messungen mit der Anfangskonzentration von ca. 200 mg/m^3 dargestellt.

Weiterhin wurden Versuche mit Anfangsmassenkonzentrationen von ca. 50 und 500 mg/m^3 durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 8 und 9 sowie in Bild 34 und 35 dargestellt. Bei Messungen mit Anfangsmassenkonzentrationen von ca. 500 mg/m^3 wird eine Verdünnungsstufe zur Probengasaufbereitung eingesetzt, da hier die Anzahlkonzentration den Wert 10^5 cm^{-3} übersteigt. Der Wert 10^5 cm^{-3} ist die Grenze des Meßbereichs der Anzahlkonzentration vom Streulichtanalysator. Der Probenstrom aus der Mischkammer wird durch eine Verdünnungsstufe um den Faktor 10 verdünnt. Damit wird die Anzahlkonzentration bis unter den Wert 10^5 cm^{-3} herabgesetzt.

Tabelle 7. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung mit der Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m³

| Messung | relative Feuchte | D _{Mod,A} | D _{Mod,V} | D _{Mod,K} | Gesamtzahlkonzentration | Standardabweichung |
|---------|------------------|--------------------|--------------------|--------------------|-------------------------|--------------------|
| - | in % | in µm | in µm | in µm | in cm ⁻³ | ln σ _g |
| 1 | 10 | 0,35 | 0,75 | 0,37 | 5,56E+04 | 1,08 |
| 2 | 20 | 0,35 | 0,75 | 0,37 | 5,68E+04 | 1,08 |
| 3 | 40 | 0,35 | 0,75 | 0,37 | 5,52E+04 | 1,08 |
| 4 | 50 | 0,35 | 0,75 | 0,37 | 5,70E+04 | 1,08 |
| 5 | 65 | 0,35 | 0,48 | - | 3,65E+04 | 1,0 |
| 6 | 70 | 0,35 | 0,66 | - | 3,61E+04 | 1,0 |
| 7 | 75,5 | 0,4885 | 0,52 | - | 4,84E+04 | 0,92 |
| 8 | 77,5 | 0,5055 | 0,56 | - | 5,59E+04 | 0,7 |
| 9 | 79 | 0,441 | 0,51 | - | 5,44E+04 | 0,7 |
| 10 | 80,5 | 0,524 | 0,52 | - | 5,70E+04 | 0,7 |
| 11 | 82,5 | 0,524 | 0,53 | - | 6,12E+04 | 0,77 |
| 12 | 84 | 0,524 | 0,57 | - | 6,32E+04 | 0,82 |
| 13 | 86 | 0,524 | 0,58 | - | 6,74E+04 | 0,85 |
| 14 | 88 | 0,5055 | 0,59 | - | 6,88E+04 | 0,7 |
| 15 | 89 | 0,524 | 0,63 | - | 7,88E+04 | 0,7 |
| 16 | 90 | 0,524 | 0,58 | - | 6,21E+04 | 0,7 |
| 17 | 91,5 | 0,4275 | 0,59 | - | 6,51E+04 | 0,86 |
| 18 | 92,5 | 0,524 | 0 | - | 6,93E+04 | 0 |
| 19 | 94 | 0,4885 | 0,59 | - | 6,92E+04 | 0,62 |
| 22 | 96 | 0,524 | 0,52 | - | 7,43E+04 | 0,75 |
| 23 | 96,5 | 0,524 | 0,6 | - | 7,18E+04 | 0,73 |
| 21 | 97 | 0,524 | 0,59 | - | 7,08E+04 | 0,79 |
| 20 | 97 | 0,524 | 0,61 | - | 7,90E+04 | 0,68 |
| 24 | 98 | 0,524 | 0,6 | - | 7,86E+04 | 0,74 |
| 25 | 100 | 0,524 | 0,63 | - | 7,38E+04 | 0,72 |
| 26 | 100 | 0,524 | 0,63 | - | 7,68E+04 | 0,71 |

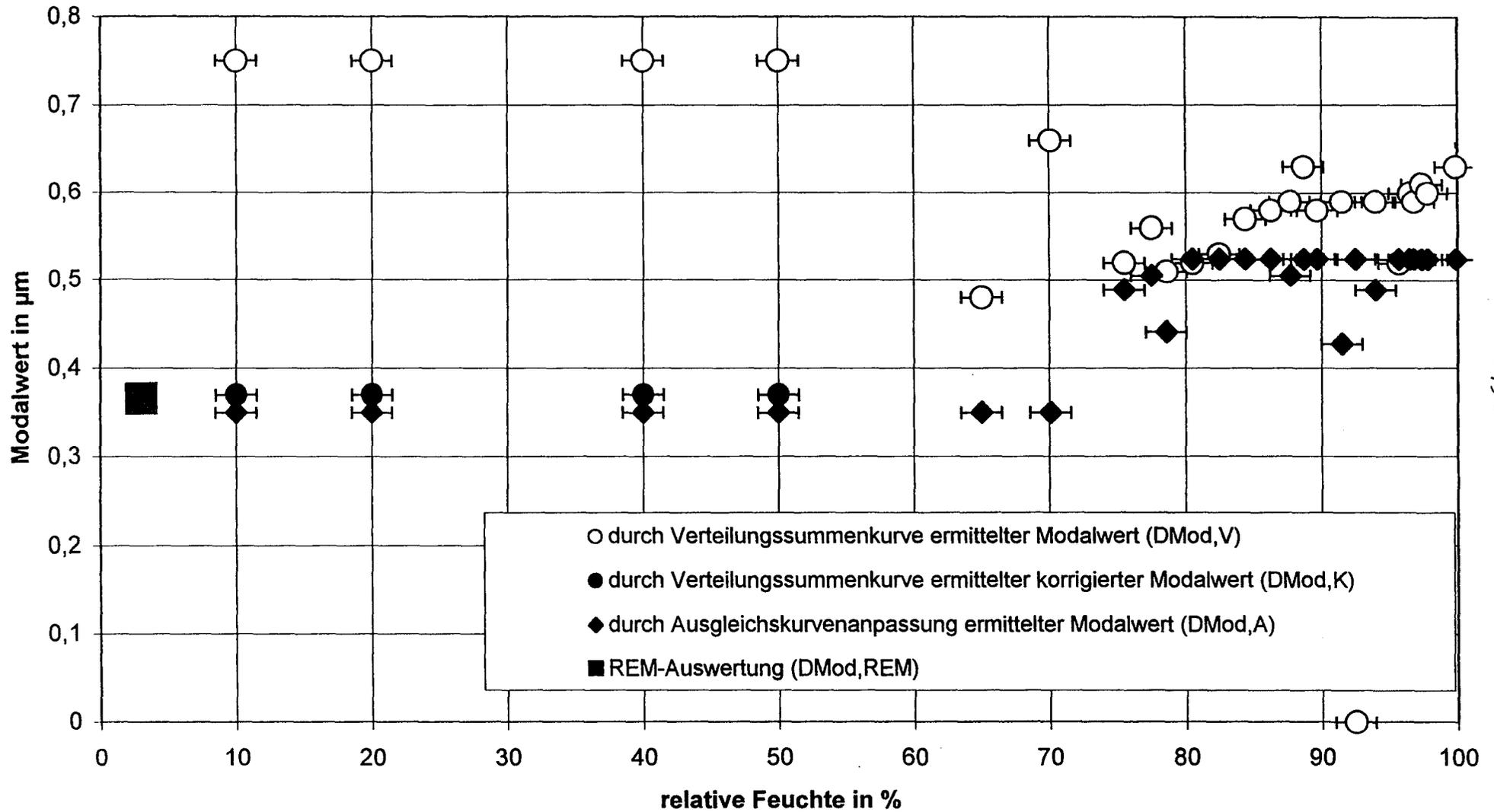
Bemerkung: D_{Mod,A} = durch Ausgleichskurvenanpassung ermittelter Modalwert

D_{Mod,V} = durch Verteilungssummenkurve ermittelter Modalwert

D_{Mod,K} = durch Verteilungssummenkurve ermittelter korrigierter Modalwert

- = keine Korrektur erforderlich (s.o.)

Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger und höherer relativer Feuchte



- 79 -

Bild 33. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3

Tabelle 8. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung mit der Anfangsmassenkonzentration von ca. 50 mg/m³

| Messung | relative Feuchte | D _{Mod,A} | D _{Mod,V} | D _{Mod,K} | Gesamtzahlkonzentration | Standardabweichung |
|---------|------------------|--------------------|--------------------|--------------------|-------------------------|--------------------|
| - | in % | in µm | in µm | in µm | in cm ⁻³ | ln σ _g |
| 3 | 3 | 0,35 | 0,63 | 0,37 | 3,59E+04 | 0,99 |
| 4 | 10 | 0,35 | 0,59 | 0,37 | 3,39E+04 | 0,97 |
| 5 | 16 | 0,35 | 0,61 | 0,37 | 3,36E+04 | 0,98 |
| 6 | 20 | 0,35 | 0,61 | 0,31 | 3,65E+04 | 1,01 |
| 7 | 30,5 | 0,35 | 0,59 | 0,35 | 3,48E+04 | 0,96 |
| 8 | 38,5 | 0,35 | 0,59 | 0,35 | 3,59E+04 | 1,0 |
| 9 | 46,5 | 0,35 | 0,56 | 0,34 | 3,25E+04 | 0,99 |
| 10 | 48,5 | 0,35 | 0,59 | 0,35 | 3,50E+04 | 0,96 |
| 11 | 54 | 0,35 | 0,55 | - | 3,15E+04 | 0,9 |
| 12 | 60 | 0,35 | 0,54 | - | 3,23E+04 | 0,91 |
| 13 | 65,5 | 0,35 | 0,53 | - | 3,28E+04 | 0,9 |
| 14 | 68 | 0,35 | 0,52 | - | 3,38E+04 | 0,88 |
| 15 | 70 | 0,35 | 0,52 | - | 3,53E+04 | 0,85 |
| 16 | 71 | 0,379 | 0,54 | - | 3,72E+04 | 0,82 |
| 17 | 72 | 0,341 | 0,43 | - | 3,65E+04 | 0,96 |
| 18 | 73 | 0,4275 | 0,53 | - | 4,16E+04 | 0,77 |
| 19 | 75 | 0,379 | 0,51 | - | 3,68E+04 | 0,72 |
| 22 | 77 | 0,5055 | 0,42 | - | 4,48E+04 | 0,92 |
| 23 | 77,5 | 0,4275 | 0,41 | - | 4,10E+04 | 0,94 |
| 21 | 76 | 0,441 | 0,52 | - | 3,75E+04 | 0,73 |
| 20 | 75 | 0,379 | 0,47 | - | 3,96E+04 | 0,87 |
| 24 | 78 | 0,4275 | 0,43 | - | 3,99E+04 | 0,89 |
| 25 | 79 | 0,441 | 0,45 | - | 4,75E+04 | 0,85 |
| 26 | 80,5 | 0,4275 | 0,52 | - | 4,24E+04 | 0,88 |
| 27 | 81 | 0,4275 | 0,52 | - | 4,47E+04 | 0,88 |
| 28 | 83 | 0,441 | 0,52 | - | 4,64E+04 | 0,92 |
| 29 | 84 | 0,4275 | 0,54 | - | 4,87E+04 | 0,84 |
| 30 | 85 | 0,472 | 0,42 | - | 4,89E+04 | 0,87 |
| 31 | 85 | 0,4275 | 0,45 | - | 4,92E+04 | 0,89 |

Fortsetzung der Tabelle →

Fortsetzung zu Tabelle 8.

| Messung | Relative Feuchte | $D_{Mod,A}$ | $D_{Mod,V}$ | $D_{Mod,K}$ | Gesamtzahlkonzentration | Standardabweichung |
|---------|------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------------|--------------------|
| - | in % | in μm | in μm | in μm | in cm^{-3} | $\ln \sigma_g$ |
| 39 | 88 | 0,5055 | 0,55 | - | 6,52E+04 | 0,63 |
| 40 | 88,5 | 0,544 | 0,55 | - | 6,66E+04 | 0,62 |
| 41 | 87,5 | 0,5055 | 0,48 | - | 6,84E+04 | 0,76 |
| 42 | 88 | 0,5055 | 0,55 | - | 6,58E+04 | 0,63 |
| 43 | 88 | 0,4275 | 0,54 | - | 6,37E+04 | 0,64 |
| 44 | 88 | 0,441 | 0,53 | - | 5,40E+04 | 0,69 |
| 45 | 90 | 0,5055 | 0,54 | - | 6,64E+04 | 0,6 |
| 46 | 88 | 0,5055 | 0,55 | - | 6,62E+04 | 0,62 |
| 47 | 90 | 0,4275 | 0,54 | - | 5,28E+04 | 0,6 |
| 48 | 91 | 0,4275 | 0,54 | - | 5,74E+04 | 0,59 |

Bemerkung: $D_{Mod,A}$ = durch Ausgleichskurvenanpassung ermittelter Modalwert

$D_{Mod,V}$ = durch Verteilungssummenkurve ermittelter Modalwert

$D_{Mod,K}$ = durch Verteilungssummenkurve ermittelter korrigierter Modalwert

- = keine Korrektur erforderlich (s.o.)

Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger und höherer relativer Feuchte

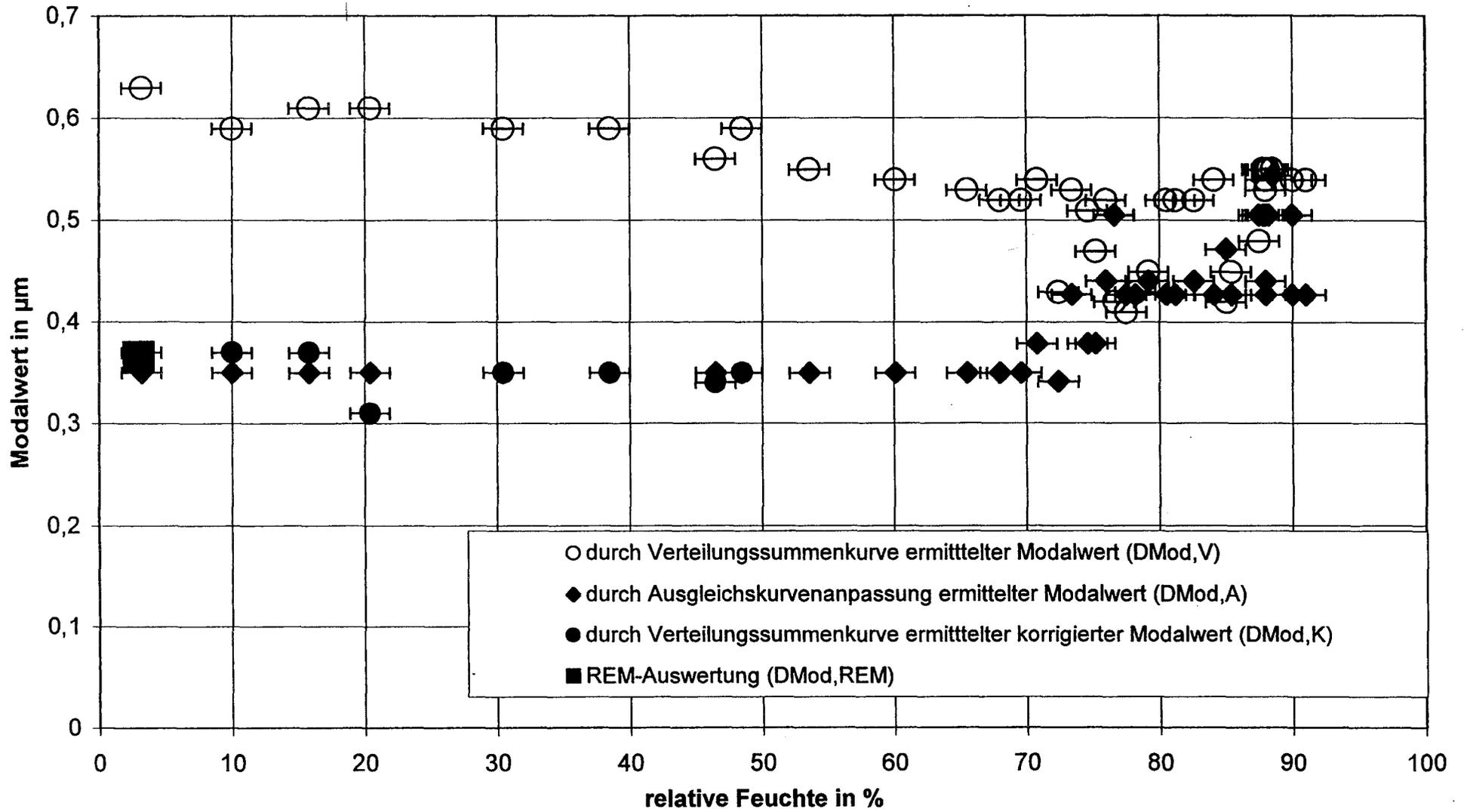


Bild 34. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m^3

Tabelle 9. Auswertung der Meßergebnisse der Partikelgrößenverteilung mit der An-
fangsmassenkonzentration von ca. 500 mg/m³

| Messung | Relative Feuchte | D _{Mod,A} | D _{Mod,V} | D _{Mod,K} | Gesamtzahlkonzentration | Standardabweichung |
|---------|------------------|--------------------|--------------------|--------------------|-------------------------|--------------------|
| - | in % | in µm | in µm | in µm | in cm ⁻³ | ln σ _g |
| 5 | 21 | 0,35 | 0,57 | 0,38 | 1,08E+06 | 0,97 |
| 4 | 24 | 0,35 | 0,55 | 0,37 | 1,06E+06 | 1,00 |
| 3 | 25 | 0,35 | 0,55 | 0,37 | 1,12E+06 | 1,00 |
| 2 | 27 | 0,35 | 0,54 | 0,36 | 9,84E+05 | 0,99 |
| 1 | 30 | 0,35 | 0,54 | 0,36 | 9,76E+05 | 0,99 |
| 6 | 70 | 0,35 | 0,49 | - | 9,07E+05 | 0,81 |
| 7 | 70 | 0,35 | 0,49 | - | 8,34E+05 | 0,81 |
| 8 | 71,5 | 0,379 | 0,4 | - | 1,11E+06 | 0,75 |
| 9 | 72 | 0,318 | 0,37 | - | 1,10E+06 | 0,81 |
| 10 | 73 | 0,318 | 0,46 | - | 9,98E+05 | 0,61 |
| 11 | 74 | 0,369 | 0,37 | - | 8,96E+05 | 0,83 |
| 12 | 74 | 0,379 | 0,34 | - | 8,50E+05 | 0,89 |
| 13 | 75 | 0,379 | 0,36 | - | 7,95E+05 | 0,84 |
| 14 | 76 | 0,379 | 0,38 | - | 7,14E+05 | 0,78 |
| 15 | 78 | 0,441 | 0,38 | - | 6,59E+05 | 0,74 |
| 16 | 78 | 0,4275 | 0,33 | - | 4,78E+05 | 0,86 |
| 17 | 79 | 0,379 | 0,32 | - | 4,64E+05 | 0,85 |
| 18 | 83 | 0,379 | 0,37 | - | 6,87E+05 | 0,78 |
| 19 | 89 | 0,4015 | 0,4 | - | 5,39E+05 | 0,7 |
| 20 | 95,5 | 0,441 | 0,46 | - | 6,83E+05 | 0,57 |
| 21 | 97 | 0,379 | 0,45 | - | 5,96E+05 | 0,58 |
| 22 | 98 | 0,379 | 0,44 | - | 5,23E+05 | 0,6 |
| 23 | 99 | 0,379 | 0,47 | - | 1,01E+06 | 0,59 |
| 24 | 100 | 0,379 | 0,47 | - | 9,99E+05 | 0,6 |
| 25 | 100 | 0,379 | 0,46 | - | 7,64E+05 | 0,61 |
| 26 | 100 | 0,379 | 0,49 | - | 7,76E+05 | 0,61 |

Bemerkung: D_{Mod,A} = durch Ausgleichskurvenanpassung ermittelter Modalwert

D_{Mod,V} = durch Verteilungssummenkurve ermittelter Modalwert

D_{Mod,K} = durch Verteilungssummenkurve ermittelter korrigierter Modalwert

- = keine Korrektur erforderlich (s.o.)

Übersicht der Modalwerte der Partikelgrößenverteilung von Flugaschen bei niedriger und höherer relativer Feuchte

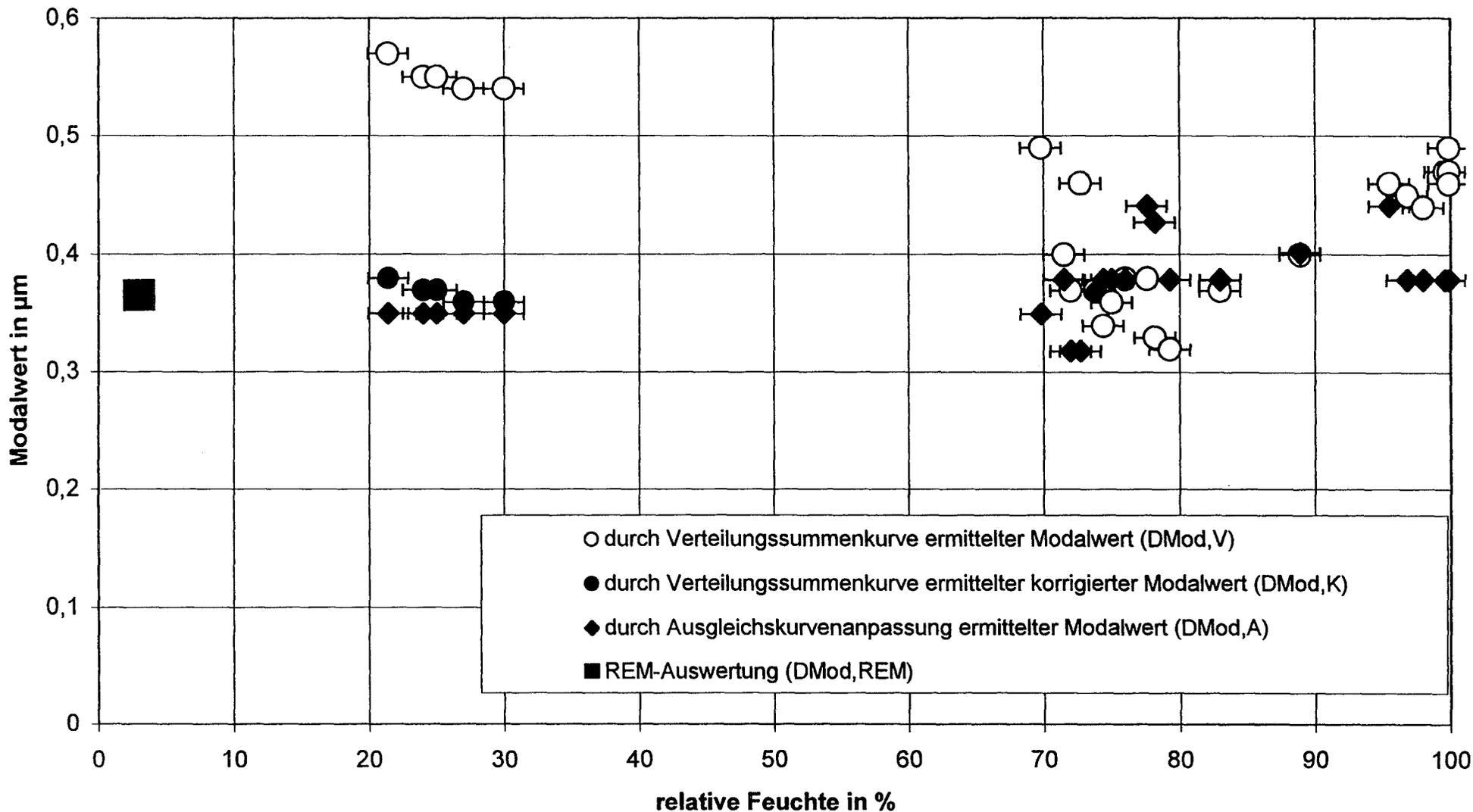


Bild 35. Übersicht der Modalwerte bei Anfangsmassenkonzentration von 500 mg/m³

4.6.2 Änderung der Verteilungsbreite beim Wachstum der Flugaschepartikel

Im voranstehenden Abschnitt wurde die Partikelgrößenverteilung der Flugasche im trockenen Zustand gemessen. Die Verteilungsbreite $\ln\sigma_g$ betrug dabei ca. 1,08. Bei Erhöhung der relativen Feuchte werden die Flugaschepartikeln wachsen. Das Wachstum der Flugaschepartikel wird in diesem Fall nur von Wasserdampfkondensation verursacht. Die Koagulation spielt hier keine Rolle (siehe Abschnitt 2.2.1). Im Wachstumsvorgang kondensieren Wasserdampfmoleküle an der Oberfläche der Flugaschepartikeln. Am Ende der Wachstumsstrecke wird die Partikelgrößenverteilung der Flugasche mit dem Streulichtanalysator gemessen. Dabei stellt sich heraus, daß mit zunehmender relativer Feuchte die Größe der Verteilungsbreite $\ln\sigma_g$ abnimmt.

In seiner Arbeit [53] berichtete Pratsinis, daß wenn das Partikelwachstum durch Kondensation verursacht wird, nimmt die Verteilungsbreite bei dem Wachstumsvorgang ab. Die Verringerung der Verteilungsbreite stellt damit als Anzeichen des Wachstumsbeginn dar. Im Bild 36 sind die ermittelten Standardabweichungen von Messungen mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m³ dargestellt (aus Tabelle 7). Aus dem Bild 36 ist zu erkennen, daß sich die Standardabweichung ab der relativen Feuchte von ca. 65 % deutlich verringert. Ab dem Punkt beginnt also das Wachstum von Flugaschepartikeln. Mit zunehmender relativer Feuchte nimmt die Standardabweichung weiter ab, was das weitere Wachstum von Flugaschepartikeln bedeutet. Ähnliche Vorgänge werden auch in Bild 37 und 38 festgestellt.

Zur Veranschaulichung der Verringerung der Verteilungsbreite wurden eine Messung bei niedriger und eine bei höher relativer Feuchte mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m³ ausgewählt und im Bild 39 die Verteilungsdichte-Kurven dargestellt.

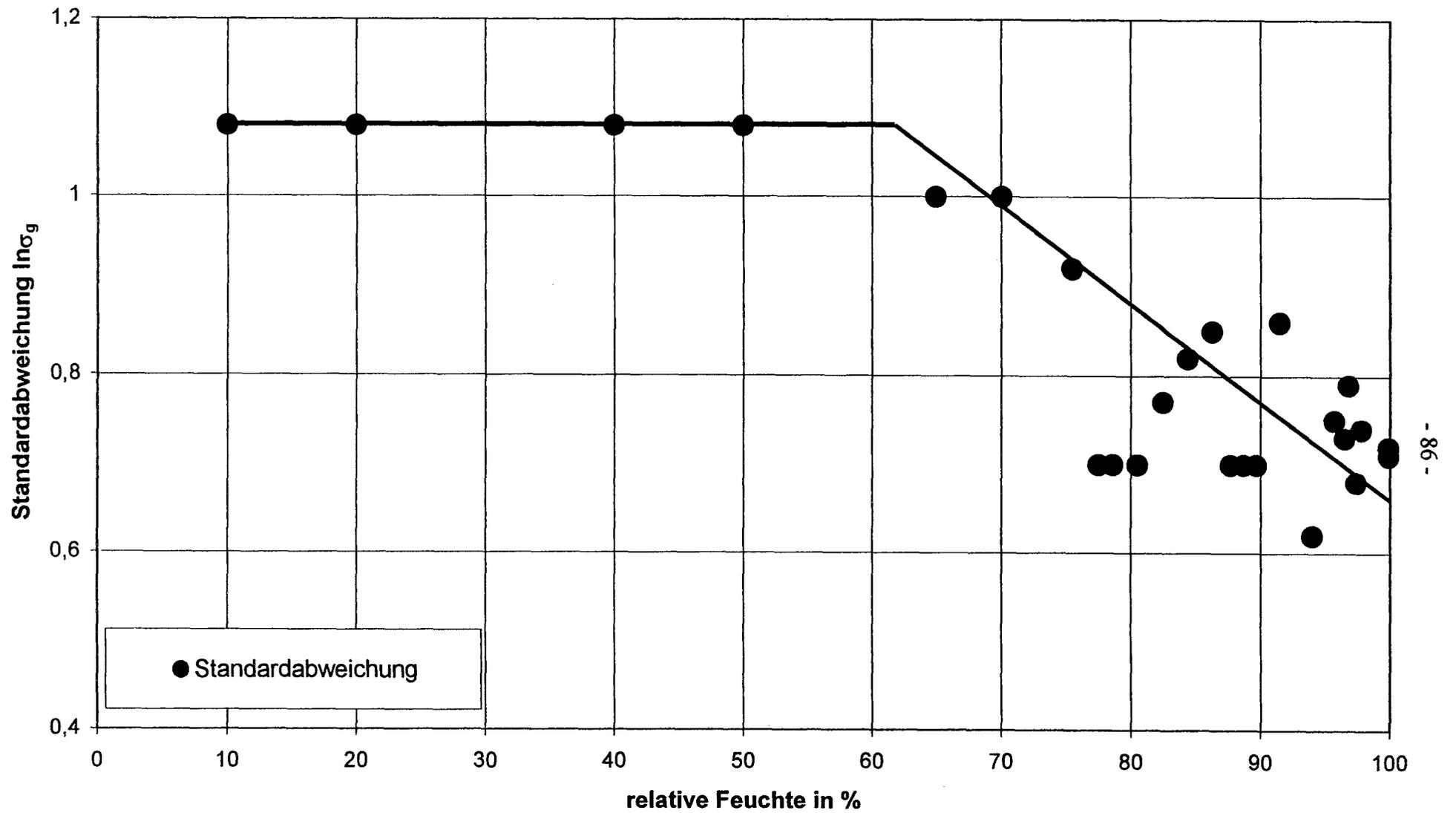


Bild 36. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3

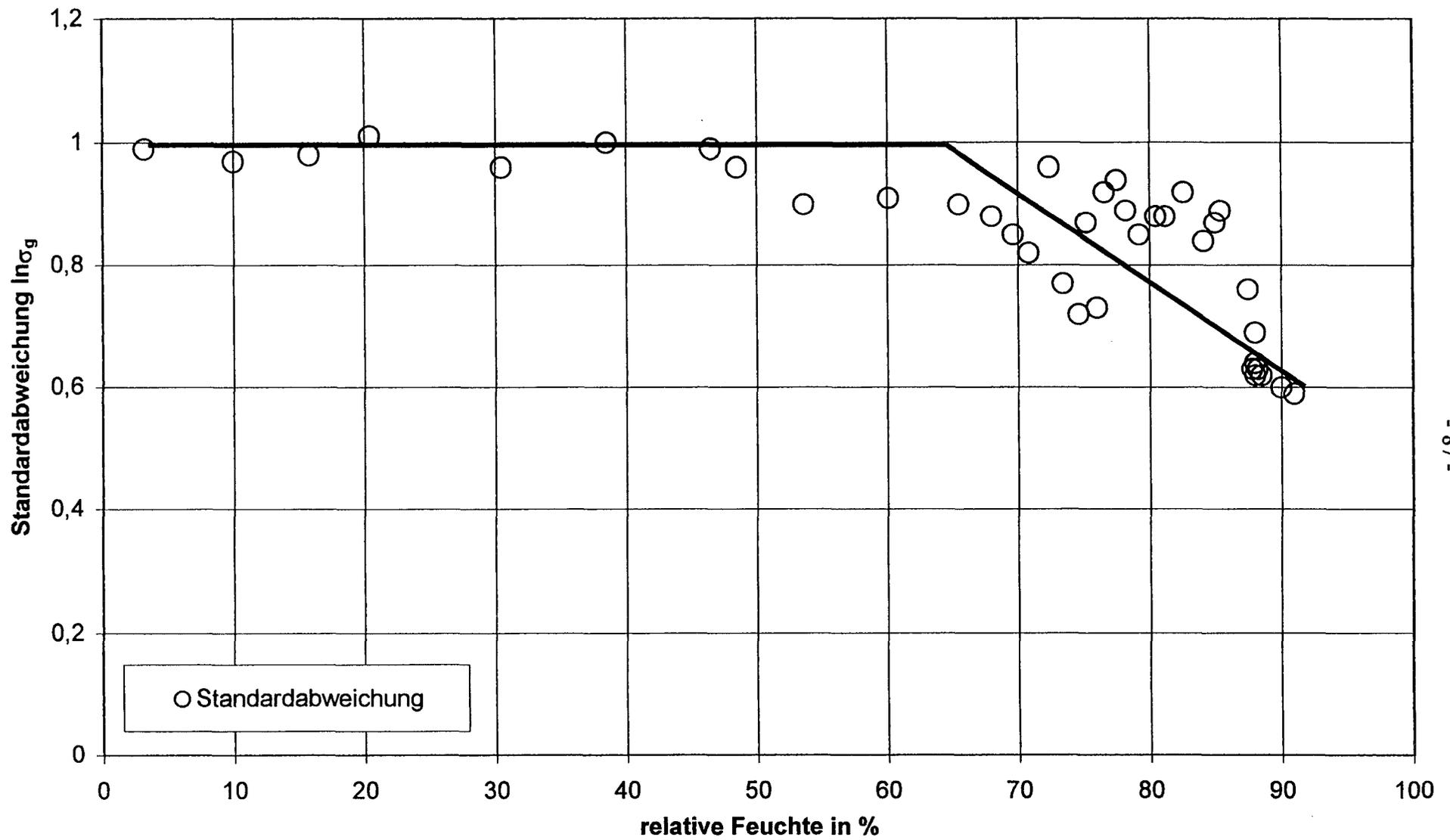


Bild 37. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m^3

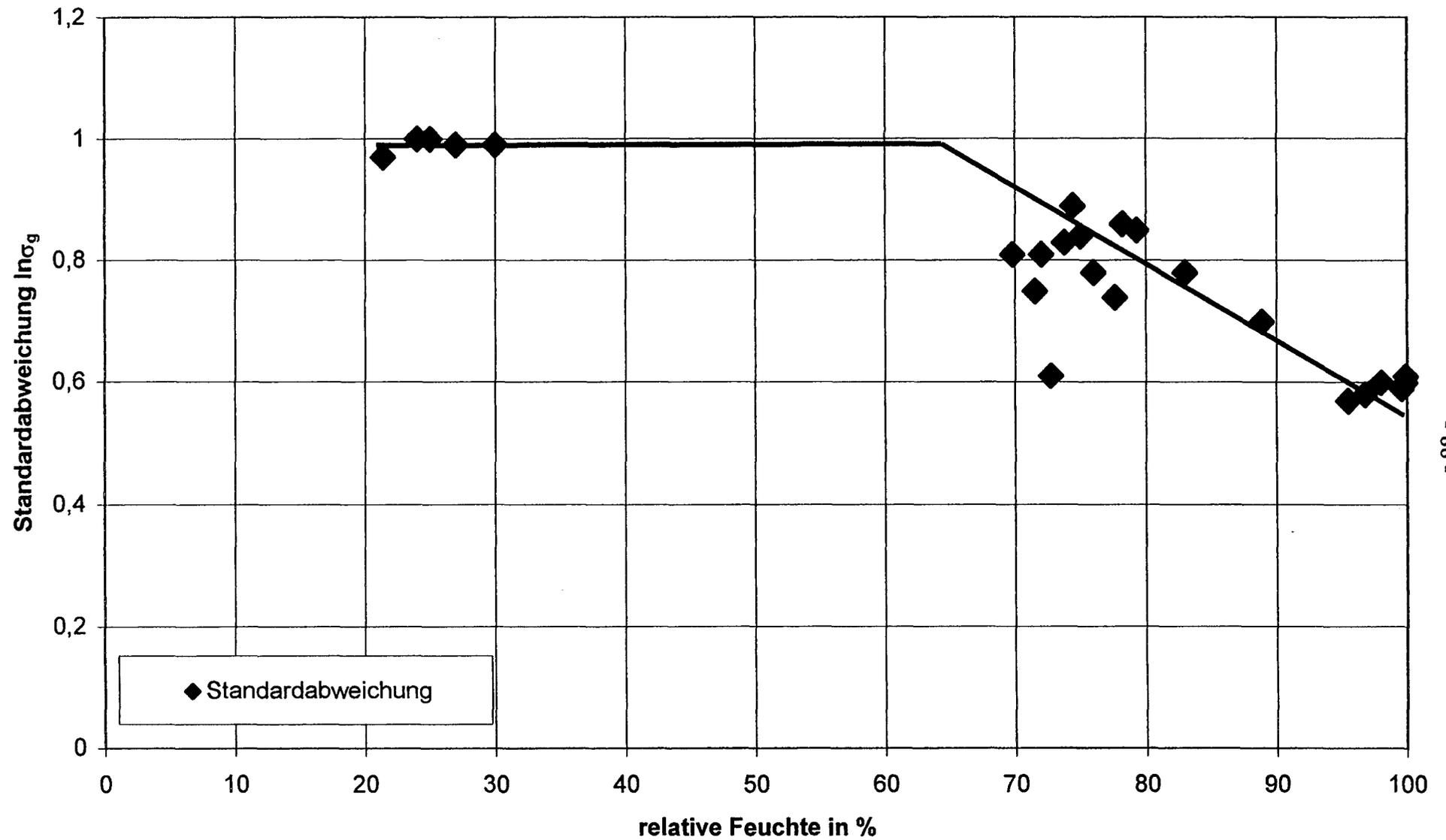


Bild 38. Die Änderung der Standardabweichung beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 500 mg/m³

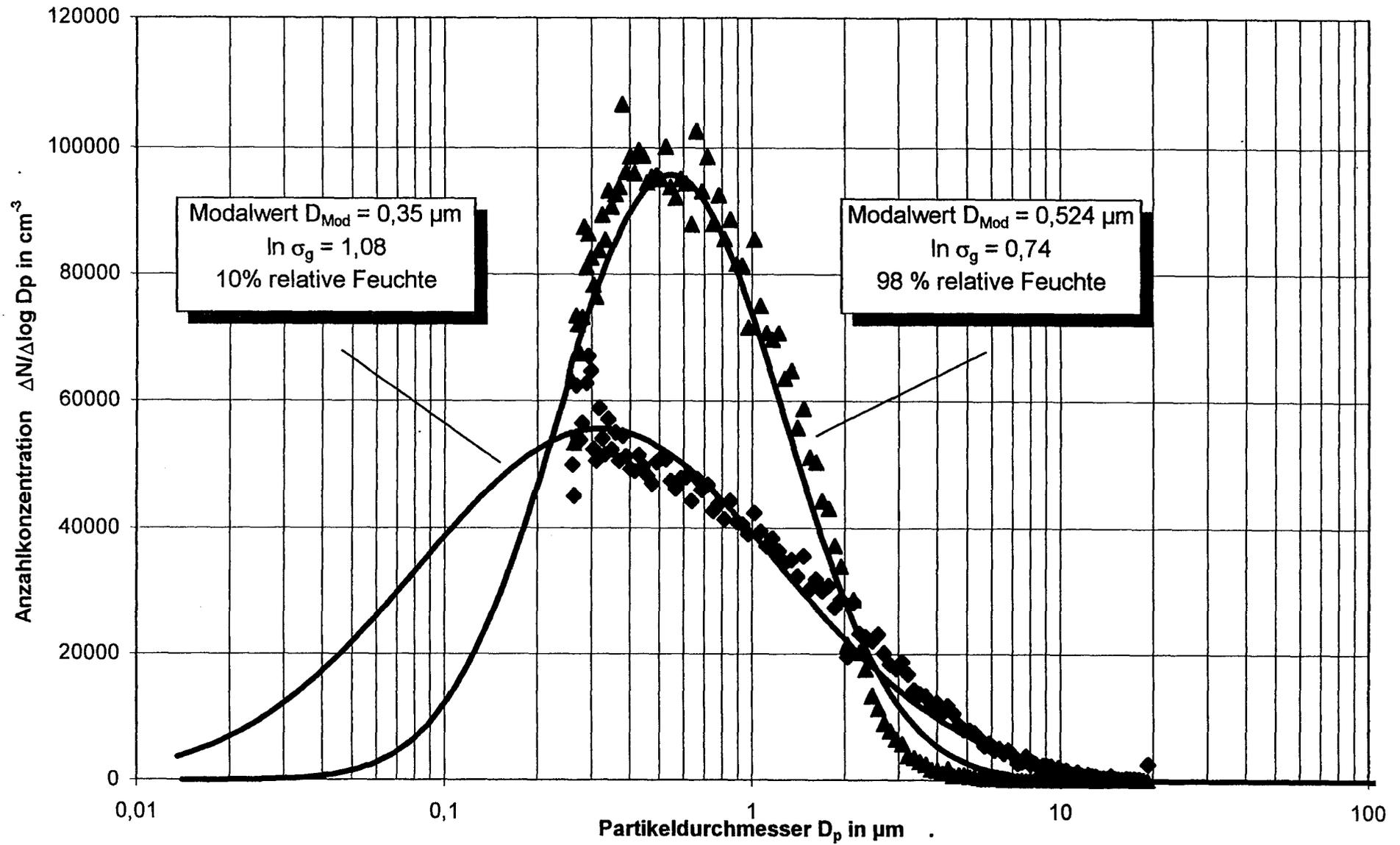


Bild 39. Die Änderung der Verteilungsbreite beim Wachstum der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3

5 Diskussion der Ergebnisse und Ausblick auf weitere Untersuchungen

5.1 Diskussion der Zunahme der gemessenen Partikelanzahlkonzentration

Wie bereits im Abschnitt 4.5 und 4.6 erwähnt wurde, liefert der Streulichtanalysator keine vollständige Partikelgrößenverteilung der Flugaschen im trockenen Zustand, da der Meßbereich von PCS 2000 nach unten nur bis $0,3 \mu\text{m}$ begrenzt. Partikel mit Durchmesser kleiner als $0,3 \mu\text{m}$ können somit nicht erfaßt werden.

Bei hoher relativer Feuchte wachsen die Partikel durch Wasserdampfkondensation. Die feinen Partikel, die vor dem Wachstum für den Streulichtanalysator nicht „sichtbar“ sind, können danach erfaßt werden. Die Partikelgrößenverteilung verschiebt sich hin zu größeren Durchmessern, so daß die Partikelgrößenverteilung nun fast vollständig vom Streulichtmeßgerät gemessen wird. Deshalb wurde bei Erhöhung der relativen Feuchte eine Zunahme der Partikelkonzentration gemessen. Im Bild 40 wird die Zunahme der gemessenen Anzahlkonzentration graphisch aus der Tabelle 7 dargestellt.

Subtrahiert man die höchste Anzahlkonzentration in hoher relativer Feuchte mit der Anzahlkonzentration in niedriger relativer Feuchte, erhält man die Anzahlkonzentration von den feinen Partikel, die vor dem Wachstum vom Streulichtmeßgerät nicht zu erfassen sind. Wird die oben genannte Anzahlkonzentration-Differenz durch die Gesamtanzahlkonzentration der vollständigen Verteilung in hoher relativer Feuchte dividiert, so erhält man den fehlenden Anteil der Partikelgrößenverteilung, der bei der Messung im trockenen Zustand vom Streulichtmeßgerät nicht zu erfassen ist. Aus Bild 40 kann der fehlende Anteil berechnet werden. Die Anzahlkonzentration der Verteilung vor dem Wachstum beträgt ca. $5,5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$. Mit der Anzahlkonzentration von ca. $8 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$ in hoher relativer Feuchte beträgt somit der fehlende Anteil der Verteilung ca. 30 %. Es wurde also nur gut die Hälfte der Partikelgrößenverteilung der Flugasche im trockenen Zustand gemessen. Bild 41 zeigt die Zunahme der gemessenen Anzahlkonzentration graphisch aus der Tabelle 8.

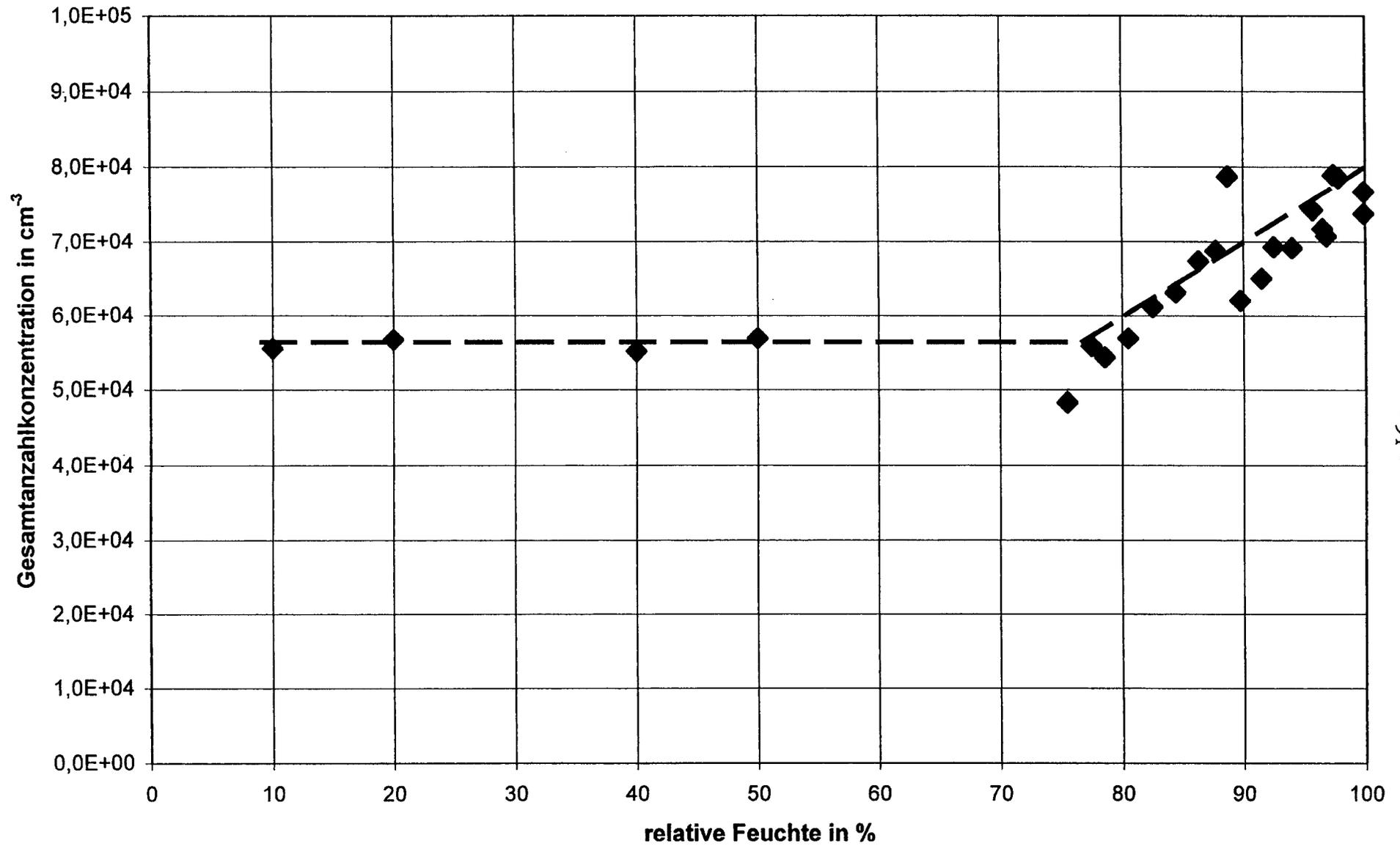


Bild 40. Die Zunahme der Anzahlkonzentration der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m³

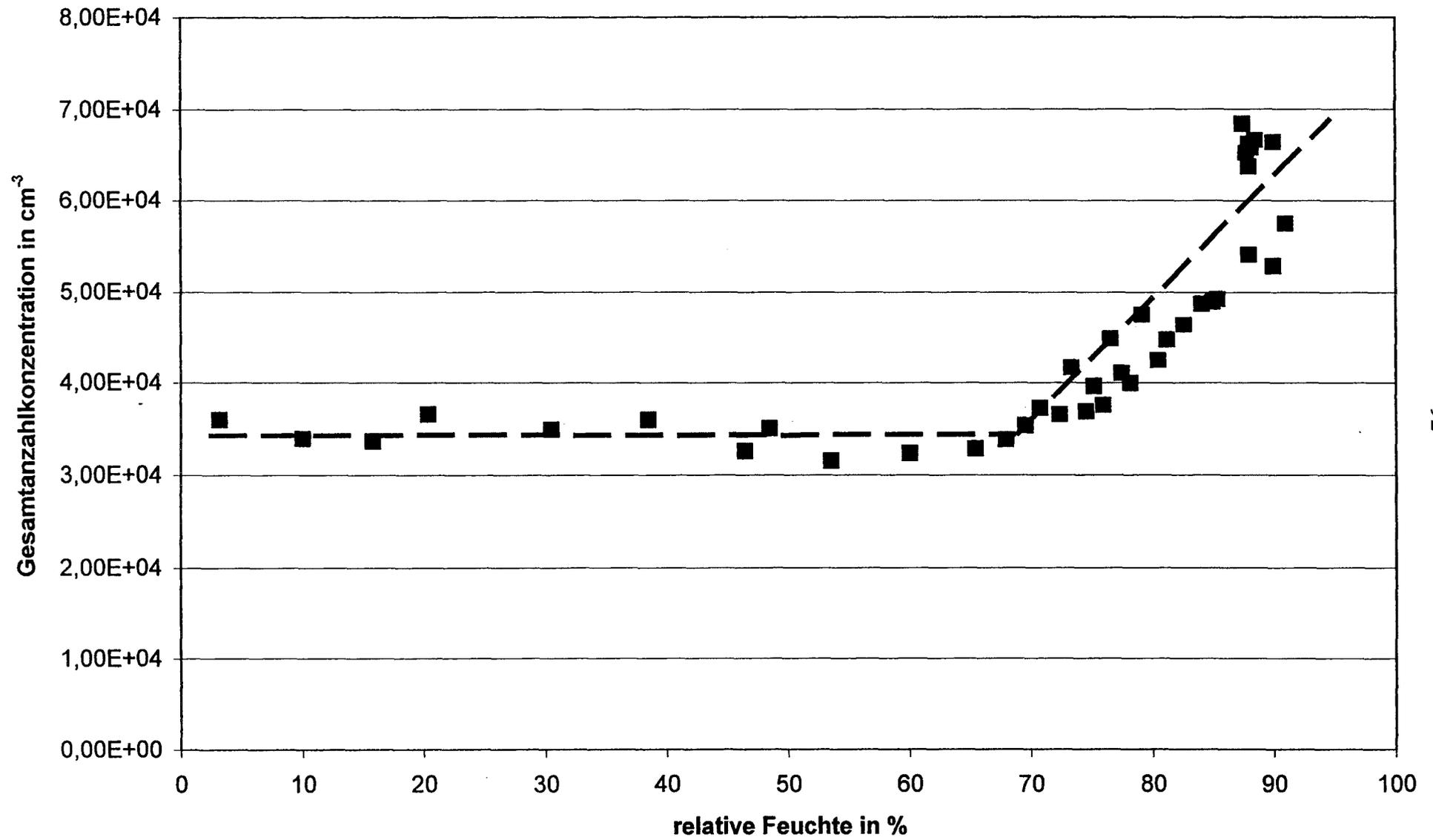


Bild 41. Die Zunahme der Anzahlkonzentration der Flugaschepartikel mit der Anfangsmassenkonzentration von 50 mg/m³

5.2 Diskussion des Wachstums der Flugaschepartikel durch Kondensation

Es wurden das Verhalten der Flugaschepartikeln in einem Gasstrom, dessen relative Feuchte durch die Zugabe von befeuchteter Luft erhöht wurde, untersucht. Erwartet wurde, wie die vorherige Untersuchung mit Salzpartikeln zeigte, ein Wachstum bei hoher relativer Feuchte.

In der ersten Meßreihe wurde die Flugasche mit Hilfe eines Feststoffdispergierers bei einer Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3 dispergiert. Bei niedriger relativer Feuchte wurde ein Anfangsmodalwert von $ca. 0,365 \pm 0,02 \text{ } \mu\text{m}$ und eine Standardabweichung von $ca. 1,08$ ermittelt.

Durch die stufenweise Erhöhung der relativen Feuchte wurde das Wachstum von Flugaschepartikeln mit dem Streulichtanalysator PCS 2000 gemessen. Dabei wurde unterhalb einer relativen Feuchte von $ca. 65 \%$ keine Veränderung der Partikelgröße bzw. der Partikelgrößenverteilung beobachtet. Erhöht man die relative Feuchte weiter wurde ein Anwachsen der Flugaschepartikeln festgestellt. Gleichzeitig wurde dabei eine deutliche Verringerung der Verteilungsbreite beobachtet. Diese Erscheinungen, das Anwachsen der Partikelgröße und die Verringerung der Verteilungsbreite, sind in den Literaturstellen auch zu finden. In [3, 8, 10] wird ein Wachstum ab einer relativen Feuchte im Bereich von $ca. 75 \%$ bis 80% berichtet, während in [53] der Beginn eines durch Kondensation hervorgerufenen Partikelwachstums durch die Verringerung der Verteilungsbreite gekennzeichnet ist.

Bei hoher relativer Feuchte von $ca. 99\%$ wurde ein maximales Partikelwachstum $ca.$ um den Faktor $1,7$ ermittelt. In der vorherigen Untersuchung mit Natriumsulfatpartikeln [17] wurde ein Partikelwachstum bis zum Faktor 3 berichtet. Die Flugaschepartikeln wachsen also nicht so stark im Vergleich zu den Salzpartikeln. Das läßt sich möglicherweise damit erklären, daß die Flugaschepartikeln keine starken hygroskopischen Eigenschaften aufweisen. Im Abschnitt 4.3 ist zu erkennen, daß ein Teil der elementaren Flugaschezusammensetzung wasserunlöslich ist. Diese könnte die hygroskopischen Eigenschaften der Flugasche vermindern.

5.3 Modell zum Wachstum der Flugaschepartikel

Eine andere Erklärung zum schwachen Wachstum der Flugaschepartikeln könnte auf den Einfluß der Partikelform, der Porosität und der Dichteänderung zurückzuführen sein. Der Einfluß bewirkt in der Weise, daß sich die Flugaschepartikeln einen besonderen Wachstumsvorgang unterziehen.

Betrachtet man die rasterelektronenmikroskopische Aufnahme von Flugaschepartikeln im Bild 22, weisen die Flugaschepartikeln eine unregelmäßige Partikelform auf. Es wird vermutet, daß der Wachstumsvorgang der Flugaschepartikel nach dem Modell in Bild 42 geschieht.

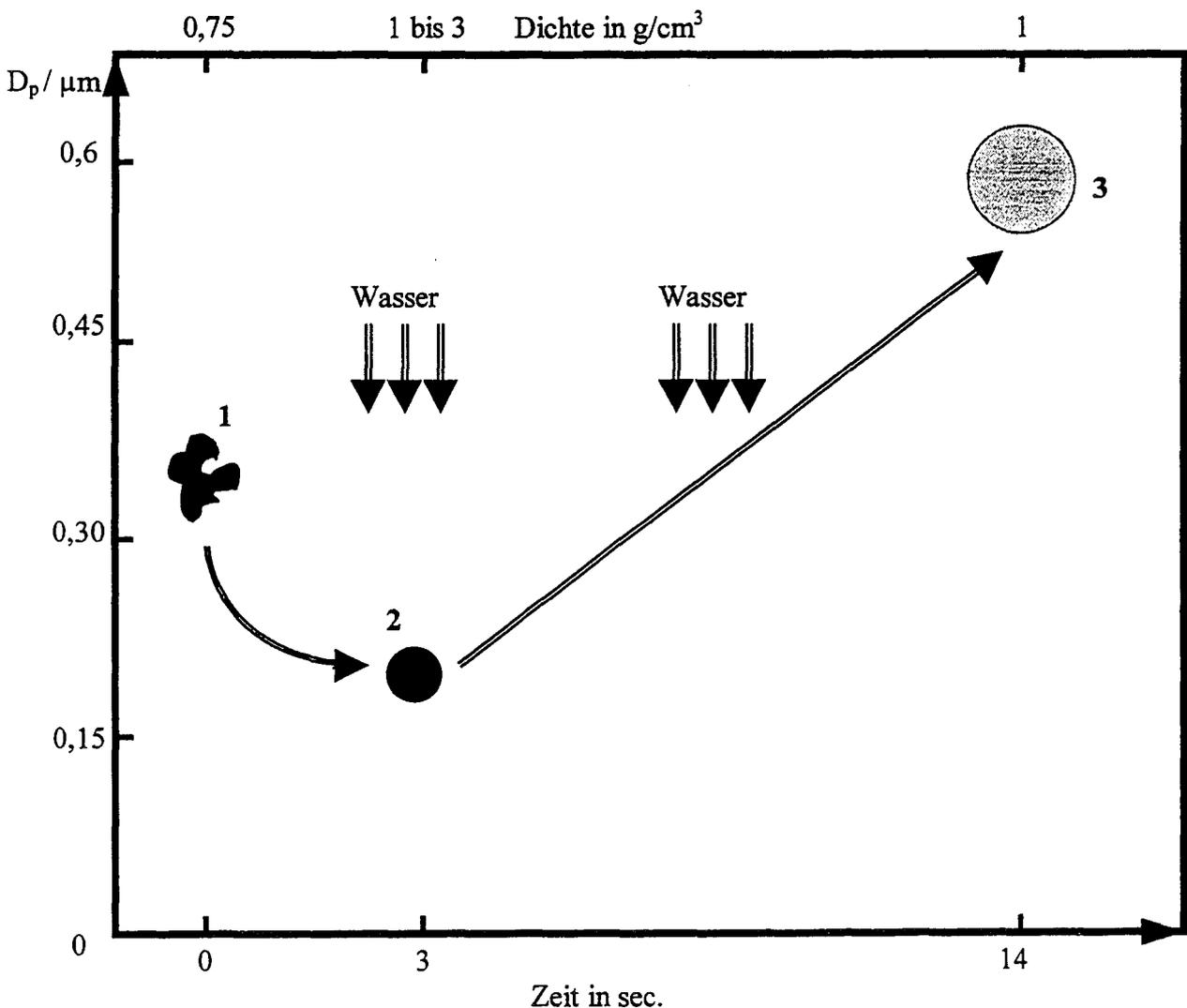


Bild 42. Modell zum Wachstum der Flugaschepartikel

Betrachtet werden die Flugaschepartikel bei hoher relativer Feuchte. Nach der Dispergierung mit dem Staubdosierer gelangt die Flugaschepartikel über die Dispergierdüse in die Verdüsungsstrecke (Punkt 1 im Bild 42). In dieser Strecke verbleibt die Flugaschepartikel ca. 3 Sekunden (vgl. Bild 6). Durch Kontakt mit dem Wasserdampf während dieser Zeit adsorbiert die Flugaschepartikel die Wasserdampfmoleküle. Wegen der unregelmäßigen Form der Flugaschepartikel neigt die Flugaschepartikel dabei zur Bildung eines kugeligen hochkonzentrierten Lösungstropfens. Die Anfangsdichte (ca. $0,75 \text{ g/cm}^3$) steigt dabei bis zu einem Wert von ca. 2 g/cm^3 . Dadurch wird die Flugaschepartikel kleiner, statt sich zu vergrößern (Punkt 2). Nach diesem Vorgang erreicht die Flugaschepartikel die Wachstumsstrecke. Bei weiterem Zufuhr des gesättigten Luftstromes in dieser Strecke wächst die Partikel durch Wasserdampfkondensation nach der Beschreibung im Abschnitt 2.2.1. Die Dichte verringert sich dabei wieder bis zu einem Wert von ca. 1 g/cm^3 . Das gemessene Partikelwachstum, zwischen den Punkten 1 und 3 erscheint verhältnismäßig klein.

Um diese Vermutung zu beweisen, muß man Messungen zeitaufgelöst durchführen. Die Probenahme wird bei unterschiedlicher Länge der Wachstumstrecke stattfinden, um die Verkleinerung der Flugaschepartikel in der Verdüsungsstrecke nachzuweisen.

6 Literaturverzeichnis

- [1] Mätzing, H.: Ein Aerosolcode zur Modellierung des Aerosolverhaltens in technischen Anlagen. Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 6004, Karlsruhe 1997.
- [2] Bechtler: Einfluß von Schwefel auf die De-Novo-Synthese org. Verbindungen aus Restkohlenstoff von Flugasche bei der Müllverbrennung, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5880, Karlsruhe 1997.
- [3] Schenkel, A.: Wachstum und Abscheidung von Aerosolen in naßarbeitenden Systemen. Fortschritt-Berichte VDI Reihe 3 Nr. 440, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1996.
- [4] Heidenreich S.: Tropfenbildung und -wachstum in Gasströmungen durch heterogene Kondensation von Wasserdampf. Fortschritt-Berichte VDI Reihe 3 Nr. 504, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1997.
- [5] Helsper, Ch.: Probleme der Staubprobenahme bei der Filterprüfung. Fachaufsätze, überreicht durch Fa. Palas GmbH.
- [6] Ziemer, W.: Grundlagen und Geschichte der Aerosolphysik. Vortrag zum Jubiläumseminar 10. PALAS ATS-Seminar, 1996.
- [7] Schaber, K.: Aerosolbildung bei der Absorption und Partikelkondensation. Chem.-Ing. Tech., 62 (1990) 793-804.
- [8] Schaber, K. und A. Schenkel: Growth of salt and acid aerosol particles in humid air. J. Aerosol Sci., 7 (1995) 1029-1039.
- [9] Ebert, F. und S. Heidenreich: Condensational droplet growth as a preconditioning technique for the separation of submicron particles from gases. Chem. Engineering and processing, 34 (1995) 235-244.

- [10] Baltensperger, U., H. Burtscher und E. Weingartner: Growth and structural change of combustion aerosols at high relative humidity. *Environmental Science & Tehnology*, 29 (1995) 2982-2986.

- [11] Mozurkewich, M.: Aerosol growth and the condensation coefficient for water : A review. *Aerosol Science & Technology*, 5 (1986) 223-236.

- [12] Noll, B., D. Wurz, S. Hartig und J. Feller: Berechnung von Tropfenverdunstung und -wachstum für wäßrige Lösungen von Elektrolyten. *VGB Kraftwerkstechnik*, 75 (1995) 540-543.

- [13] Löffler und Raasch : Grundlagen der mechanischen Verfahrenstechnik. Vieweg Verlag, 1991.

- [14] Bell, K-A. und A-T. Ho: Growth rate measurements of hygroscopic aerosols under conditions simulating the respiratory tract. *J. Aerosol Sci.*, 12 (1981) 247-254.

- [15] Yoshida, T., Y. Kousaka und K. Okuyama: Growth of aerosol particles by condensation. *Ind. Eng. Chem., Fundam.*, 15 (1976) 37-41.

- [16] Büttner, H.: Untersuchungen über den Einfluß von Kondensationsvorgängen in nassarbeitenden Abscheidern. Dissertation Universität Kaiserslautern, 1978.

- [17] Wieland, Th.: Einfluß der relativen Feuchte auf die Größe von Salzpartikeln. Diplomarbeit Nr. 96/68, FH Karlsruhe.

- [18] Bedienungsanleitung Feststoffdispergierer RBG 1000. Palas GmbH Partikel- und Lasermeßtechnik, Karlsruhe, 1992

- [19] Löffler, F. und A. Zahradnicek: Eine neue Dosiervorrichtung zur Erzeugung von Aerosolen aus vorgegebenen feinkörnigen Feststoffen. *Staub-Reinhaltung der Luft*, 36 (1976) 425-427.

- [20] Zahradnicek, A.: Untersuchung zur Dispergierung von Quarz- und Kalksteinfraktionen im Korngrößenbereich 0,5 – 10 µm in strömenden Gasen. Dissertation Universität Karlsruhe (TH), 1976.

- [21] VDI-Richtlinie 3491 Blatt 9
Herstellen von Prüfaerosolen mittels eines Bürstendosierers. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1980.

- [22] Bedienungsanleitung Gasprobenehmer Gas Sampler GS 312. DESAGA GmbH, Heidelberg, 1995.

- [23] Benutzer-Handbuch Massendurchflußmesser für Gase. Firma Bronkhorst High-Tech B.V., 1989.

- [24] Betriebsanleitung zu Hastings Mass-Flowmeter. Klaus Schäfer GmbH, 1980.

- [25] Bedienungsanleitung Verdünnungsstufe VKL-10 und VKL-100 S. Palas GmbH Partikel- und Lasermeßtechnik, Karlsruhe, 1995.

- [26] Bedienungsanleitung Feuchte/Temperaturmeßgerät testo 610. Testo GmbH & Co., Lenzkirch, 1995.

- [27] Prospekt der Firma Palas zum Partikelzähler und -größenanalysator PCS-2000. Palas GmbH Partikel- und Lasermeßtechnik, Karlsruhe, 1995.

- [28] Leschonski, K.: Grundlagen und moderne Verfahren der Partikelmeßtechnik. 16. Clausthaler Kurs vom 10. bis 14. Oktober 1994.

- [29] Sakbani, Kh.: Entwicklung eines Streulicht-Meßverfahrens zur Partikelgrößenpektrometrie. Dissertation Universität Karlsruhe (TH), 1983.

- [30] Heyn, R-D.: Untersuchungen zum Einsatz von Partikelgrößenanalytoren für Anwendungen auf Elbe-Schwebstoffe unter besonderer Berücksichtigung eines Laser-Streulicht-Verfahrens. Dissertation Universität Hamburg, 1982.
- [31] Mothes, H.: Bewegung und Abscheidung der Partikel im Zyklon. Dissertation Universität Karlsruhe (TH), 1982.
- [32] Jodeit, H.: Untersuchungen zur Partikelabscheidung in technischen Tiefenfiltern. Fortschritt-Berichte VDI Reihe 3 Nr. 108, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1985.
- [33] Raasch, J. und H. Umhauer: Der Koinzidenzfehler bei der Streulicht-Partikelgrößen-Zählanalyse. Fortschritt-Berichte VDI Reihe 3 Nr. 95, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1984.
- [34] Bottlinger, M.: Quantifizierung und Eliminierung des Einflusses von Partikelform und -struktur auf das Ergebnis der Streulicht-Partikelgrößen-Zählanalyse. Dissertation Universität Karlsruhe (TH), 1989.
- [35] Umhauer, H.: Untersuchung des Einflusses der Partikelform auf das Ergebnis bei der Streulicht-Partikelgrößen-Zählanalyse. Abschlußbericht DFG-Vorhaben, Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik der Universität Karlsruhe, 1989.
- [36] Quenzel, H.: Influence of refractive index on the accuracy of size determination of aerosol particles with light-scattering aerosol counters. Applied optics, 8 (1969) 165-169.
- [37] Cooke, D-D. und M. Kerker: Response calculations for light-scattering aerosol particle counters. Applied optics, 14 (1975) 734-739.
- [38] Bell, K-A. und A-T. Ho: Experimental studies of the response of an optical counter to dry and liquid particles of different shape and refractive index. J. Aerosol Sci., 12 (1981) 239-246.

- [39] VDI-Richtlinie 3489 Blatt 3
Messen von Partikeln. Methoden zur Charakterisierung und Überwachung von Prüfaerosolen. Optischer Partikelzähler. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1997.
- [40] Gebhart, J. P. Blankenberg, S. Bormann und C. Roth: Vergleichsmessungen an optischen Partikelzählern. Staub-Reinhaltung der Luft, 43 (1983) 439-447.
- [41] Büttner, H.: Messung von Partikelgrößenverteilungen im gasgetragenen Zustand mit einem optischen Partikelzähler. Chem. Ing. Tech., 55 (1983) 733
- [42] Borho, K.: Ein Streulichtmeßgerät für hohe Staubkonzentrationen. Staub-Reinhaltung der Luft, 30 (1970) 479-483.
- [43] Marple, V-A. und K-L. Rubow: Aerodynamic particle size calibration of optical particle counters. J. Aerosol Sci., 7 (1976) 425-433.
- [44] Büttner, H.: Kalibrierung einer Streulichtmeßeinrichtung zur Partikelgrößenanalyse mit Impaktoren. Chem. Ing. Tech., 55 (1983) 65.
- [45] VDI-Richtlinie 3491 Bl. 1
Messen von Partikeln. Kennzeichnung von Partikeldispersionen in Gasen. Begriffe und Definitionen. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1980.
- [46] VDI-Richtlinie 3491 Bl. 2
Messen von Partikeln. Herstellungsverfahren für Prüfaerosole. Grundlagen und Übersicht. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1980.
- [47] VDI-Richtlinie 3491 Bl. 3
Messen von Partikeln. Herstellung von Latex-Aerosolen unter Verwendung von Düsenzerstäubern. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1980.

- [48] VDI-Richtlinie 2066 Blatt 1
Messen von Partikeln. Staubmessungen in strömenden Gasen, gravimetrische Bestimmung der Staubbelastung – Übersicht –. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1975.
- [49] DIN 66141
Darstellung von Korn-(Teilchen-)größenverteilungen. Beuth-Vertrieb GmbH, Berlin, 1974.
- [50] VDI-Richtlinie 3489 Blatt 1
Messen von Partikeln. Methoden zur Charakterisierung und Überwachung von Prüfaerosolen – Übersicht –. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1997.
- [51] DIN 66144
Darstellung von Korn-(Teilchen-)größenverteilungen, Logarithmisches Normalverteilungsnetz. Beuth-Vertrieb GmbH, Berlin.
- [52] Papula, L. : Mathematik für Ingenieure 2. Vieweg-Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, 1991.
- [53] Pratsinis, S.E.: Simultaneous nucleation, condensation, and koagulation in aerosol reactors. J. Coll. Int. Sci., 124 (1988) 416-427.
- [54] DIN 66161
Partikelgrößenanalyse. Formelzeichen, Einheiten. Beuth-Vertrieb GmbH, Berlin, 1985.
- [55] Mätzing, H., W. Baumann, M. Eichelberger und K. Woletz: unveröffentlichter Bericht, FZK ITC-TAB, 1997.
- [56] Hunsinger, H., S. Kreis und H. Vogg: Formation of Chlorinated Aromatic Compounds in the Raw Gas of Waste Incineration Plants. Chemosphere, 34 [1997] 1033-1043.

Anhang

Wachstum der Flugaschepartikel durch Kondensation – Darstellung der Verteilungsdichte-Kurven der Messungen mit Anfangsmassenkonzentration von 200 mg/m^3

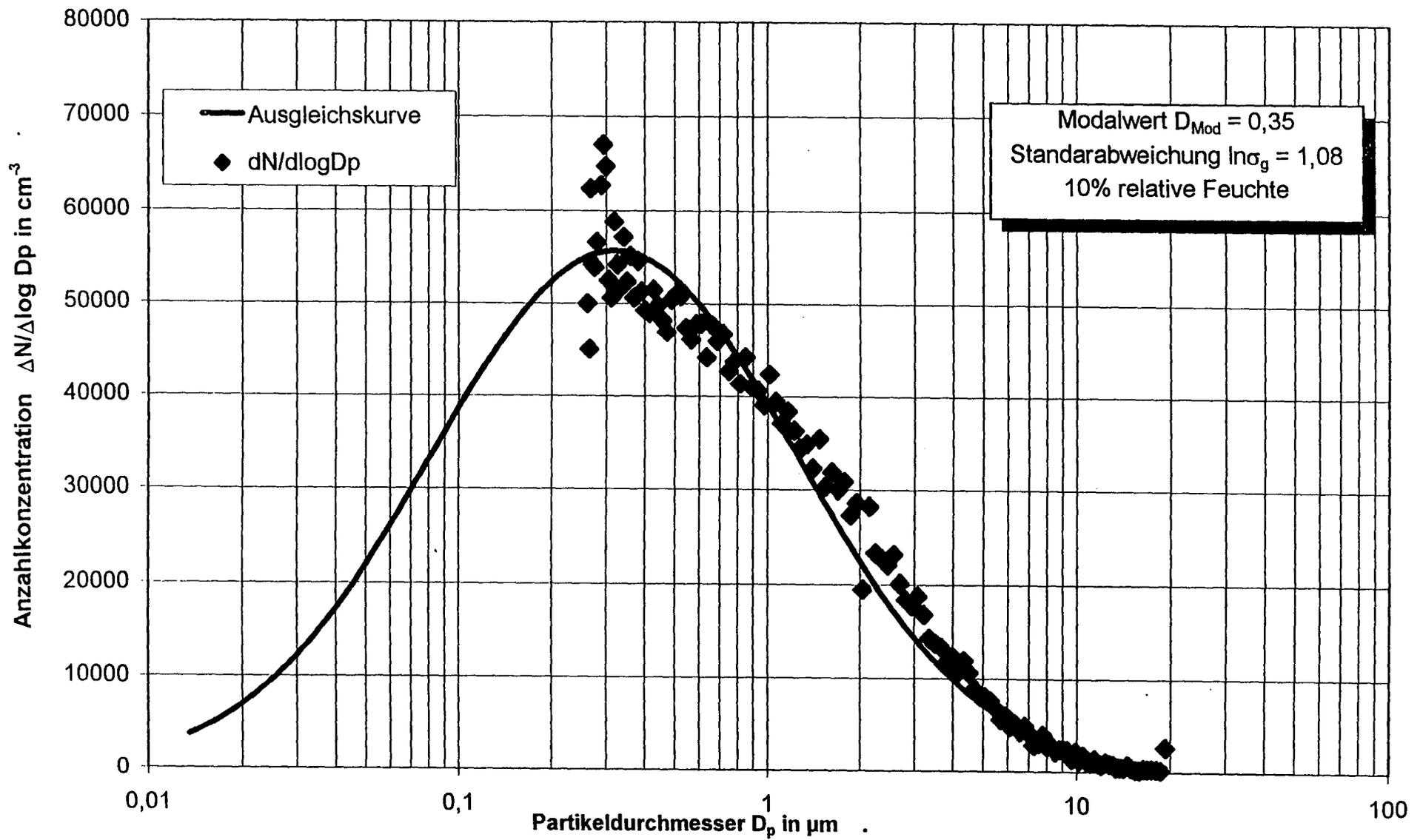


Bild A1. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

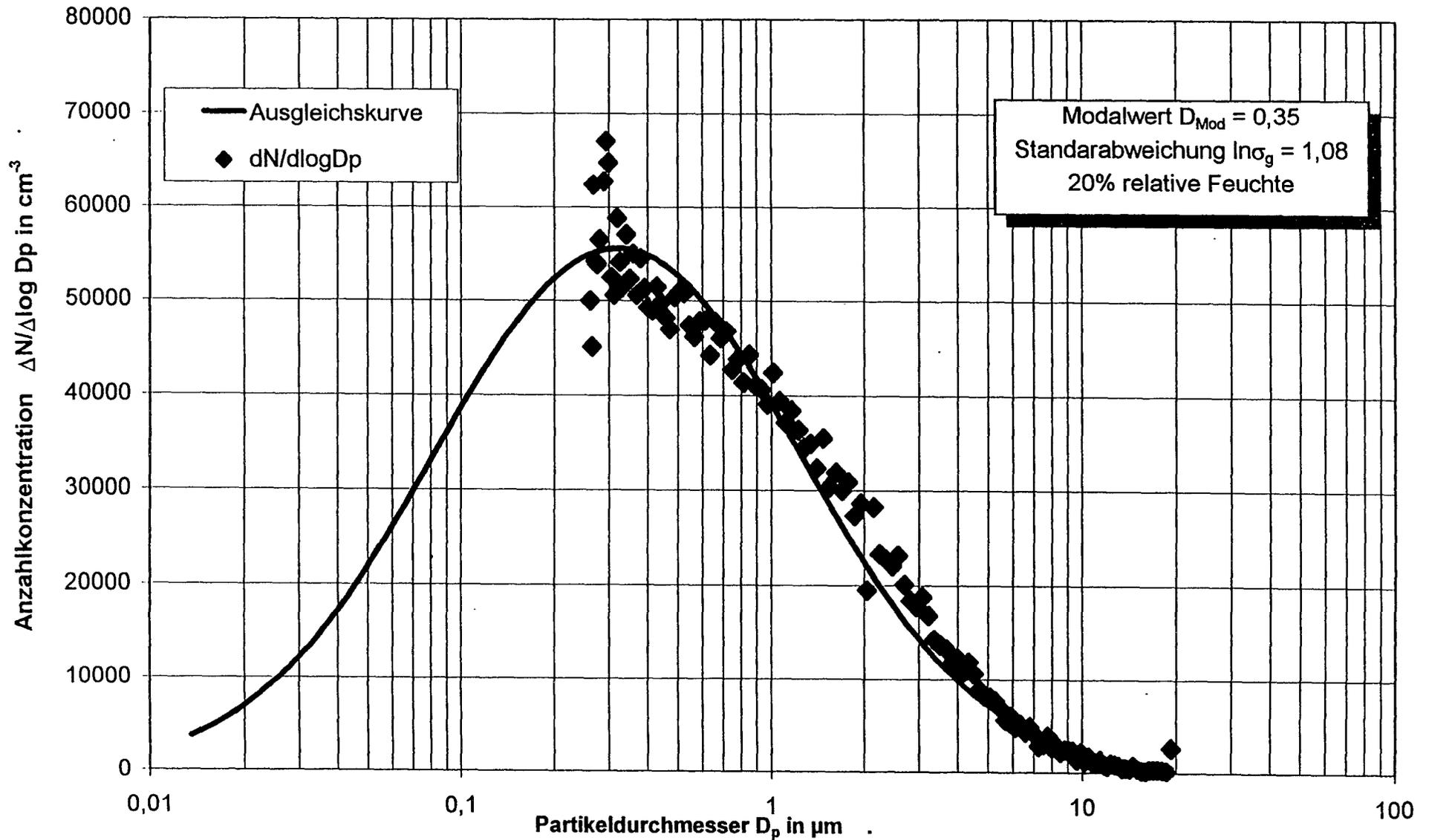


Bild A2. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m³

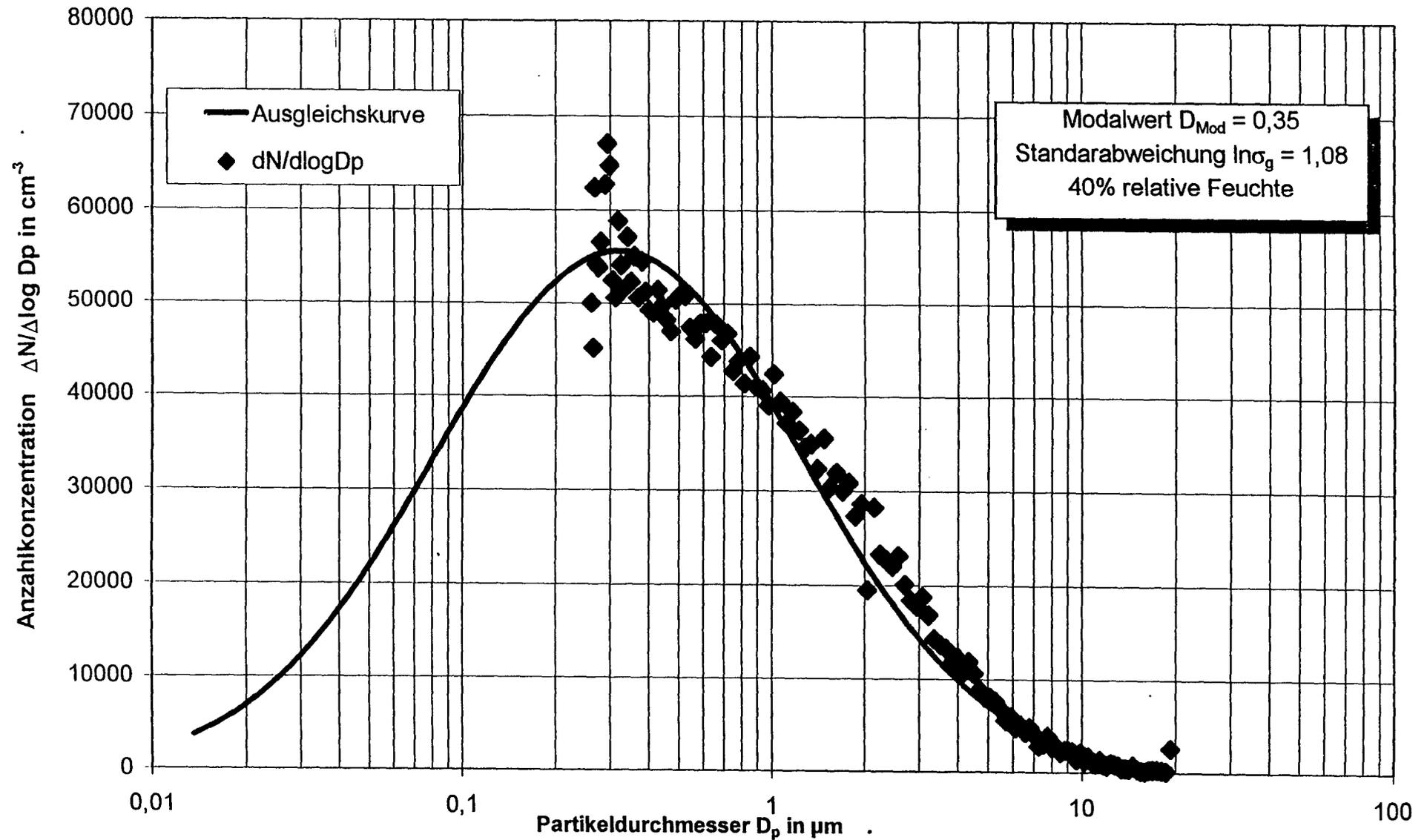


Bild A3. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

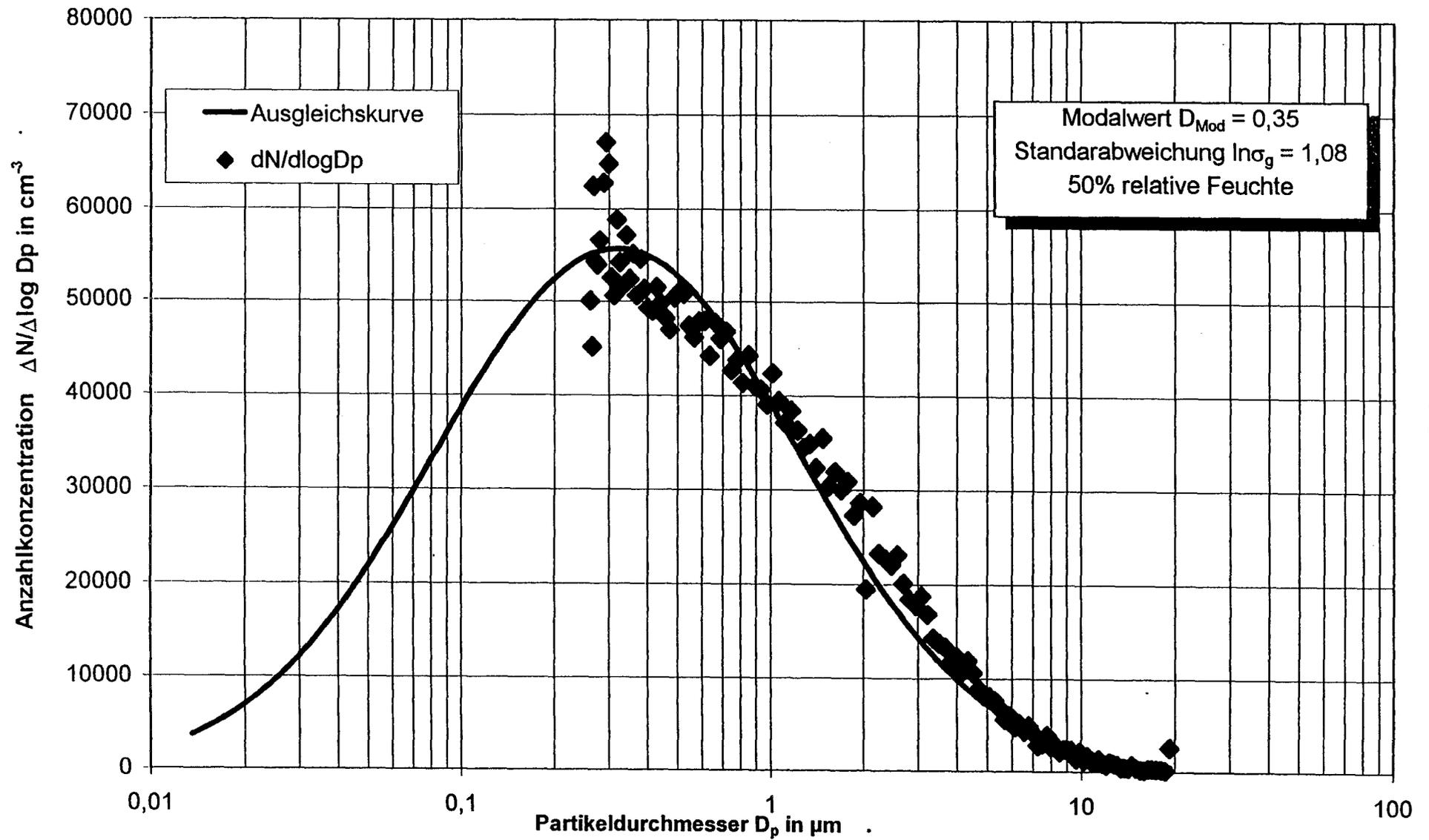


Bild A4. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

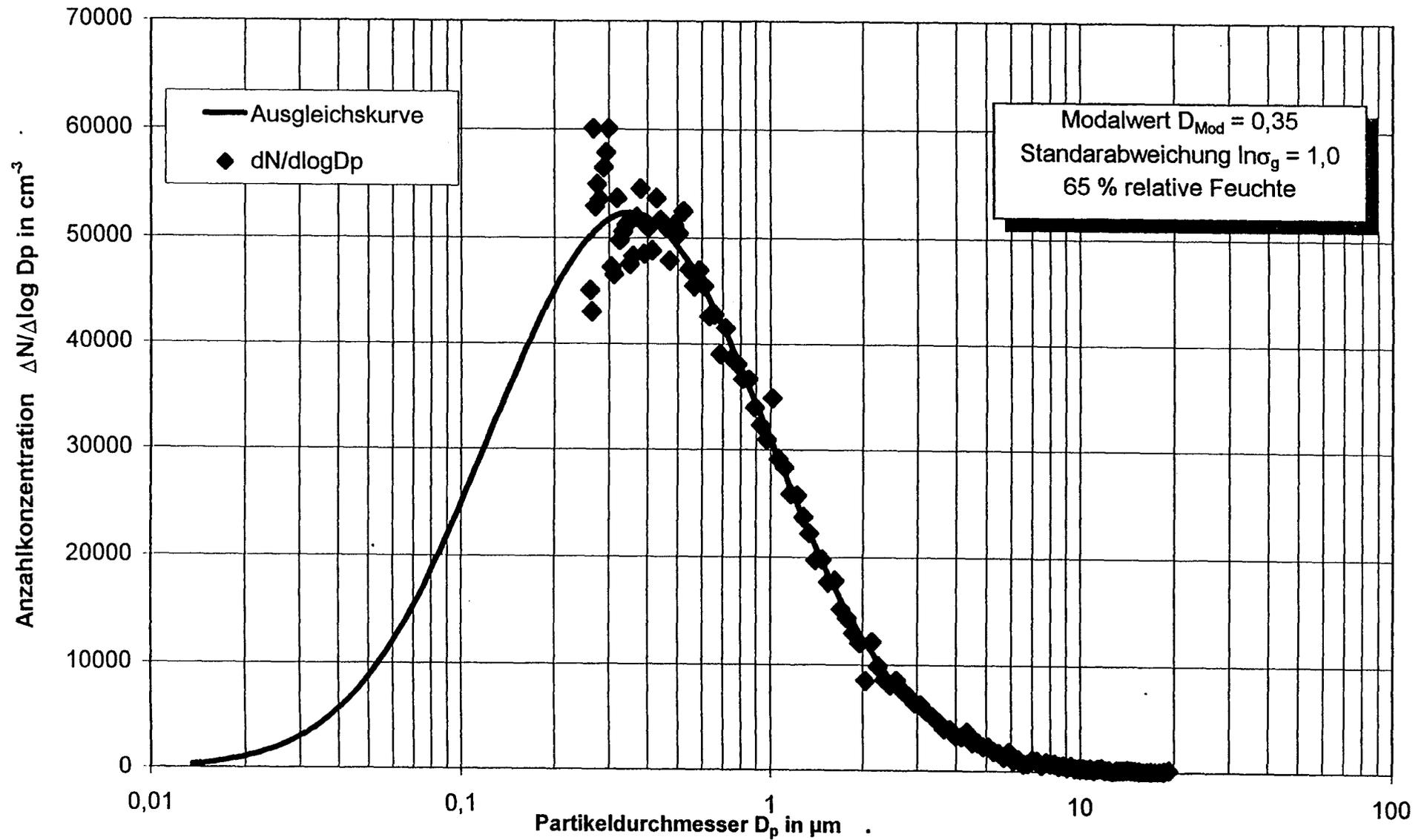


Bild A5. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

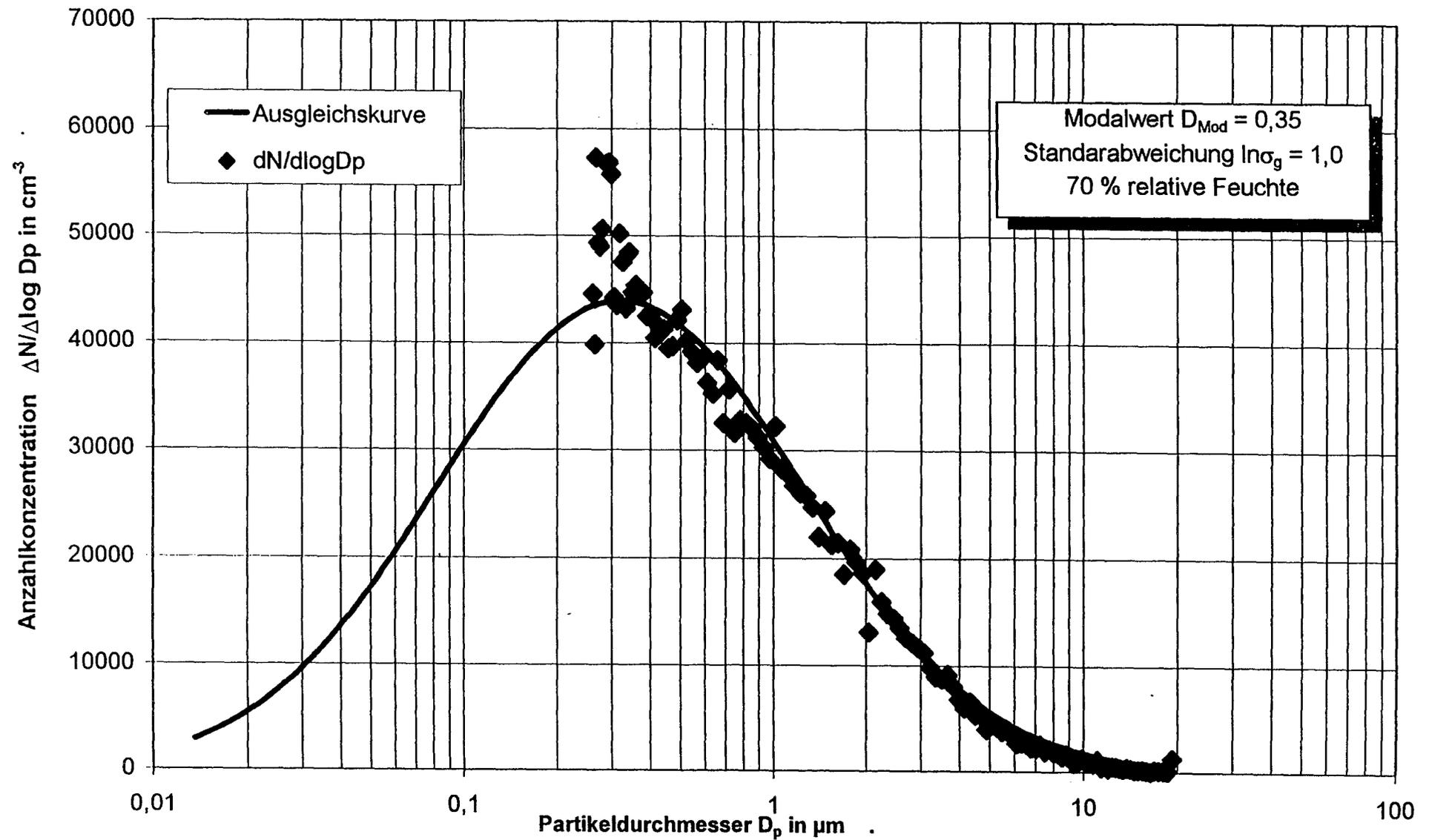


Bild A6. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

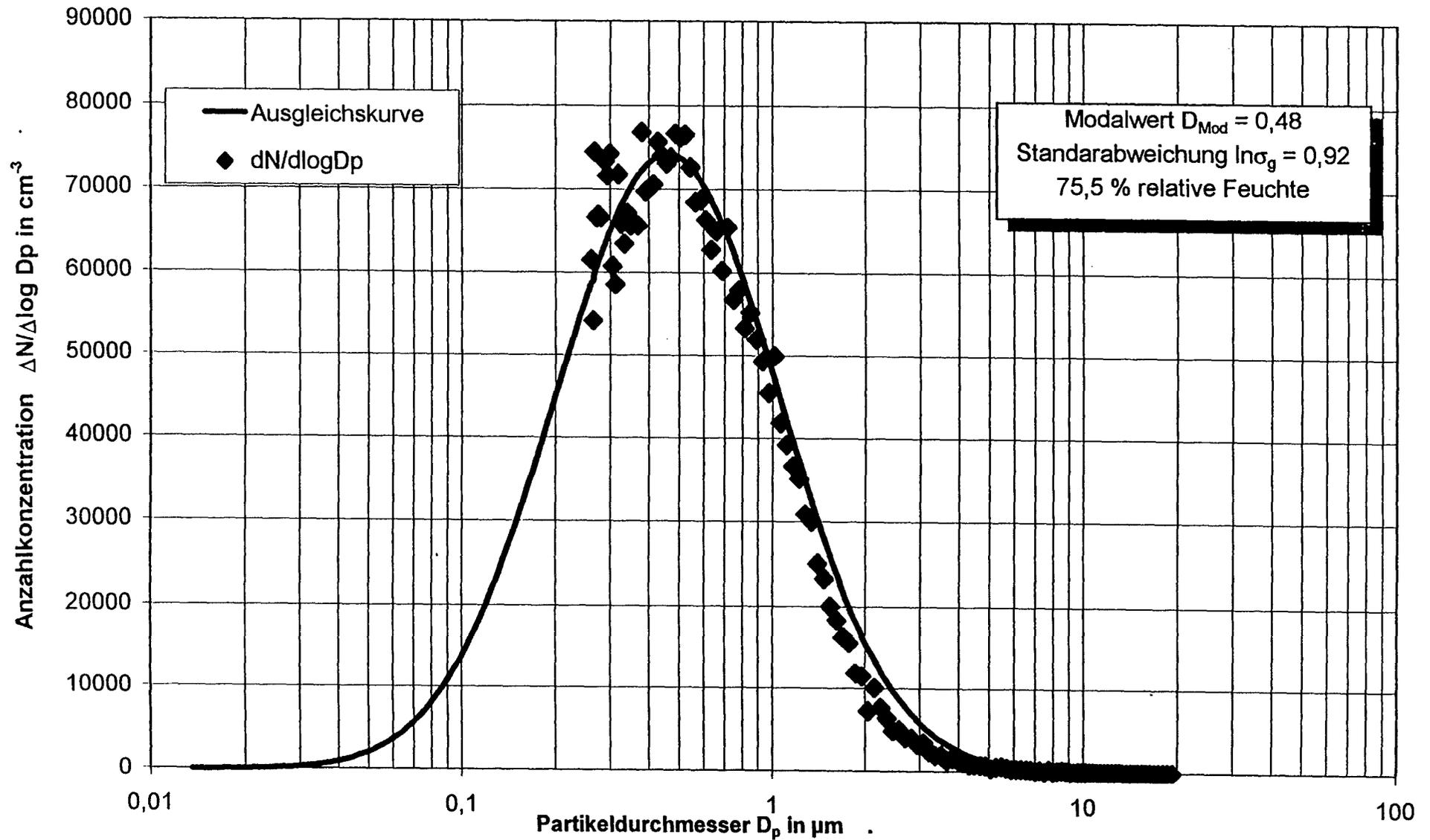


Bild A7. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

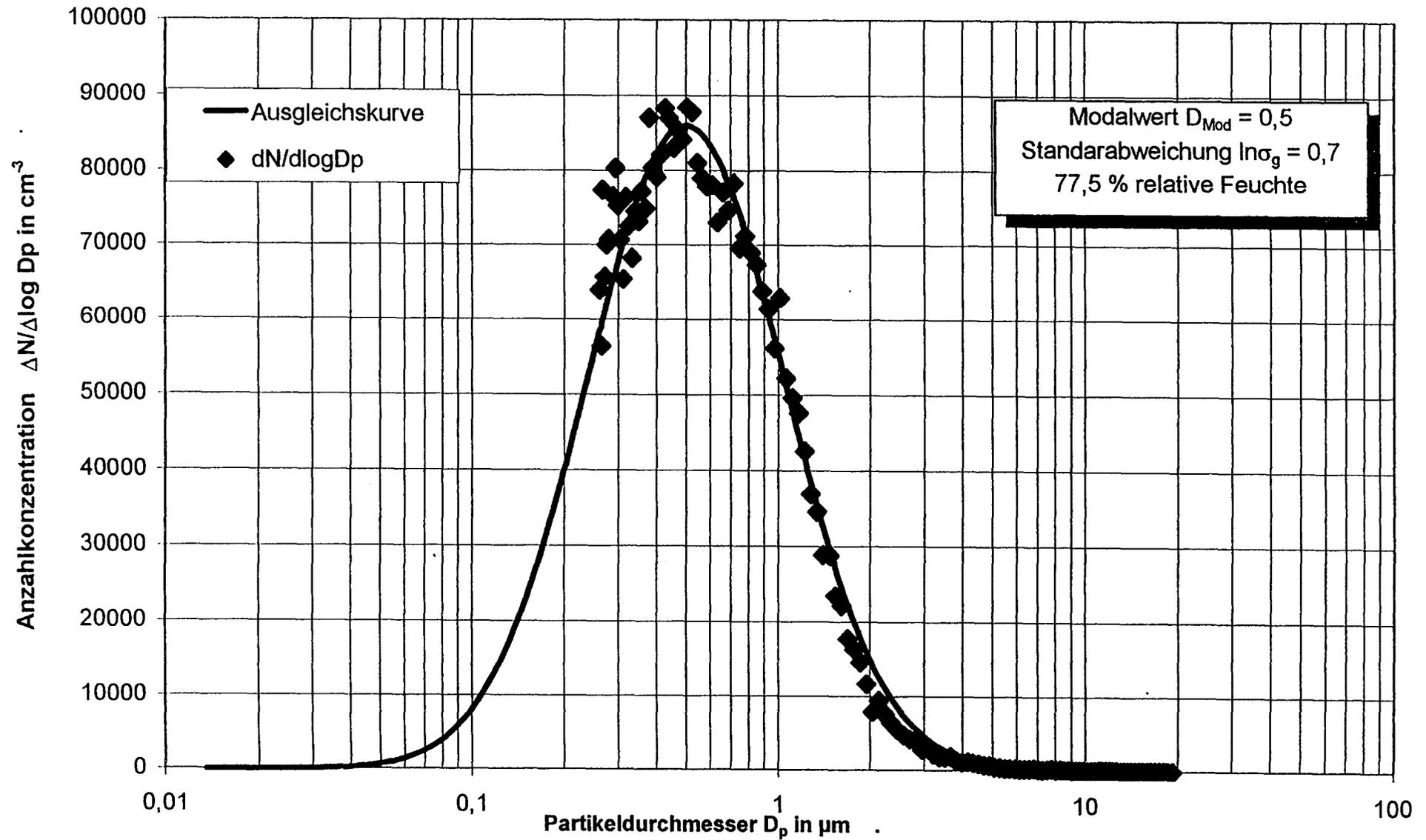


Bild A8. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

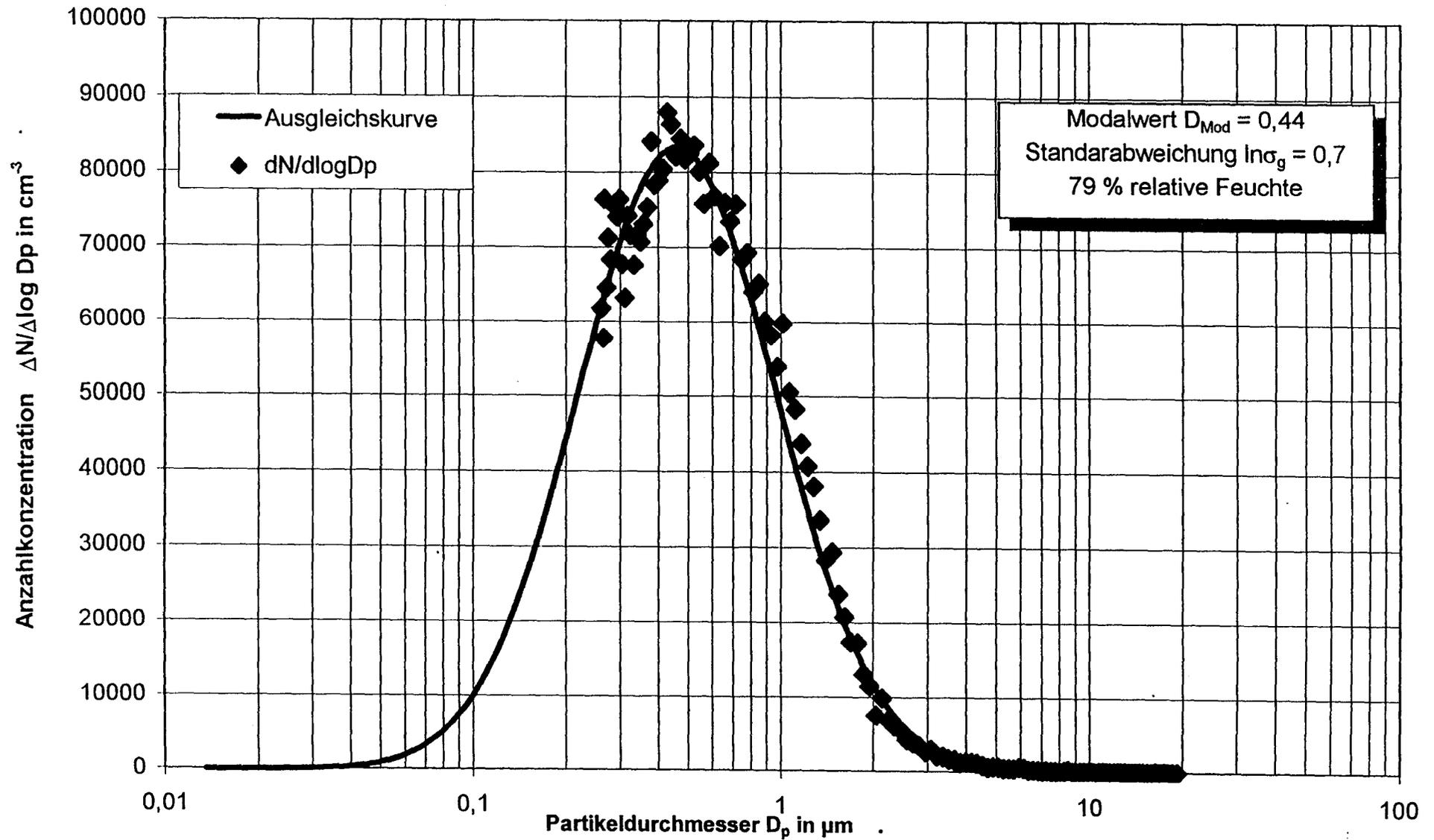


Bild A9. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

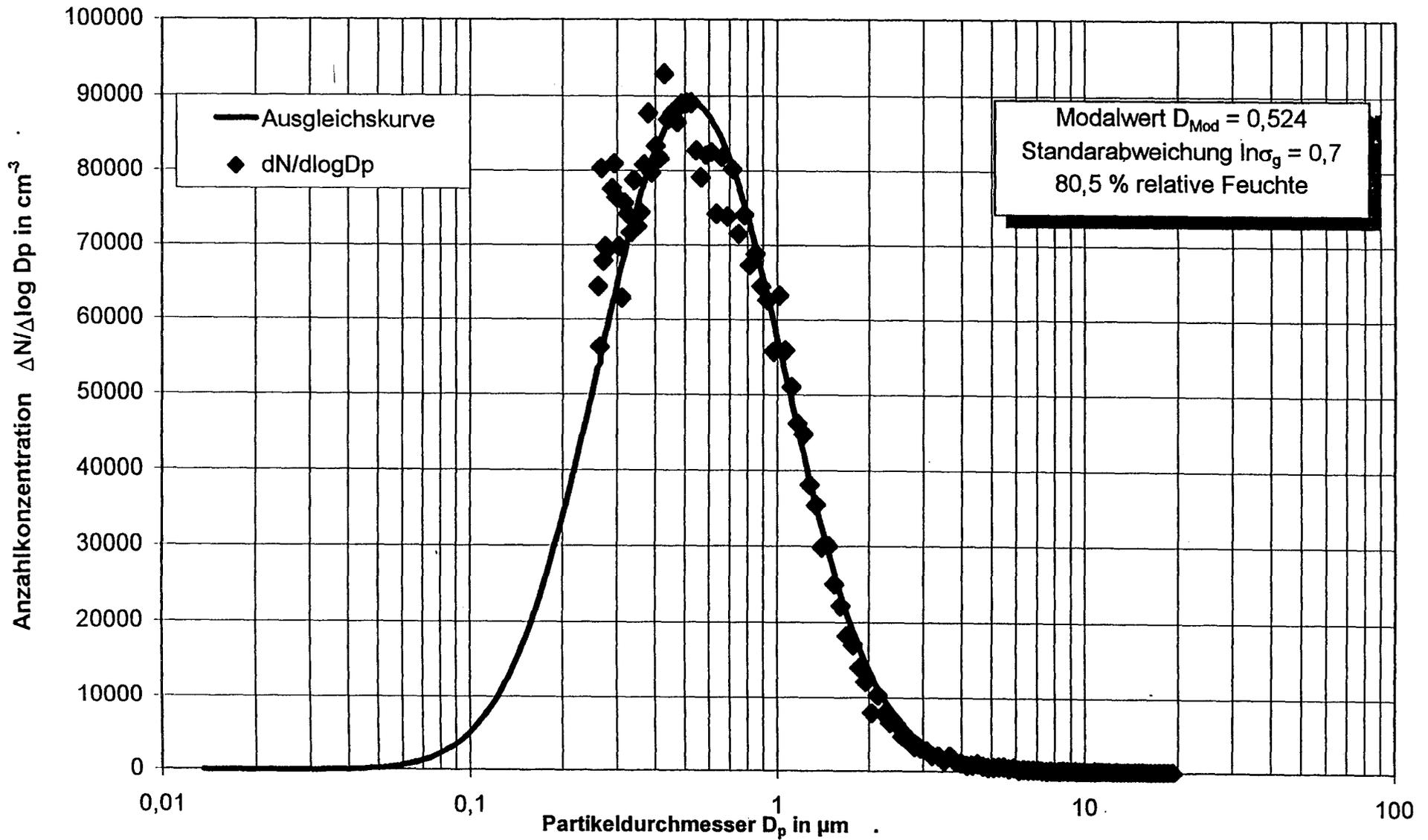


Bild A10. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

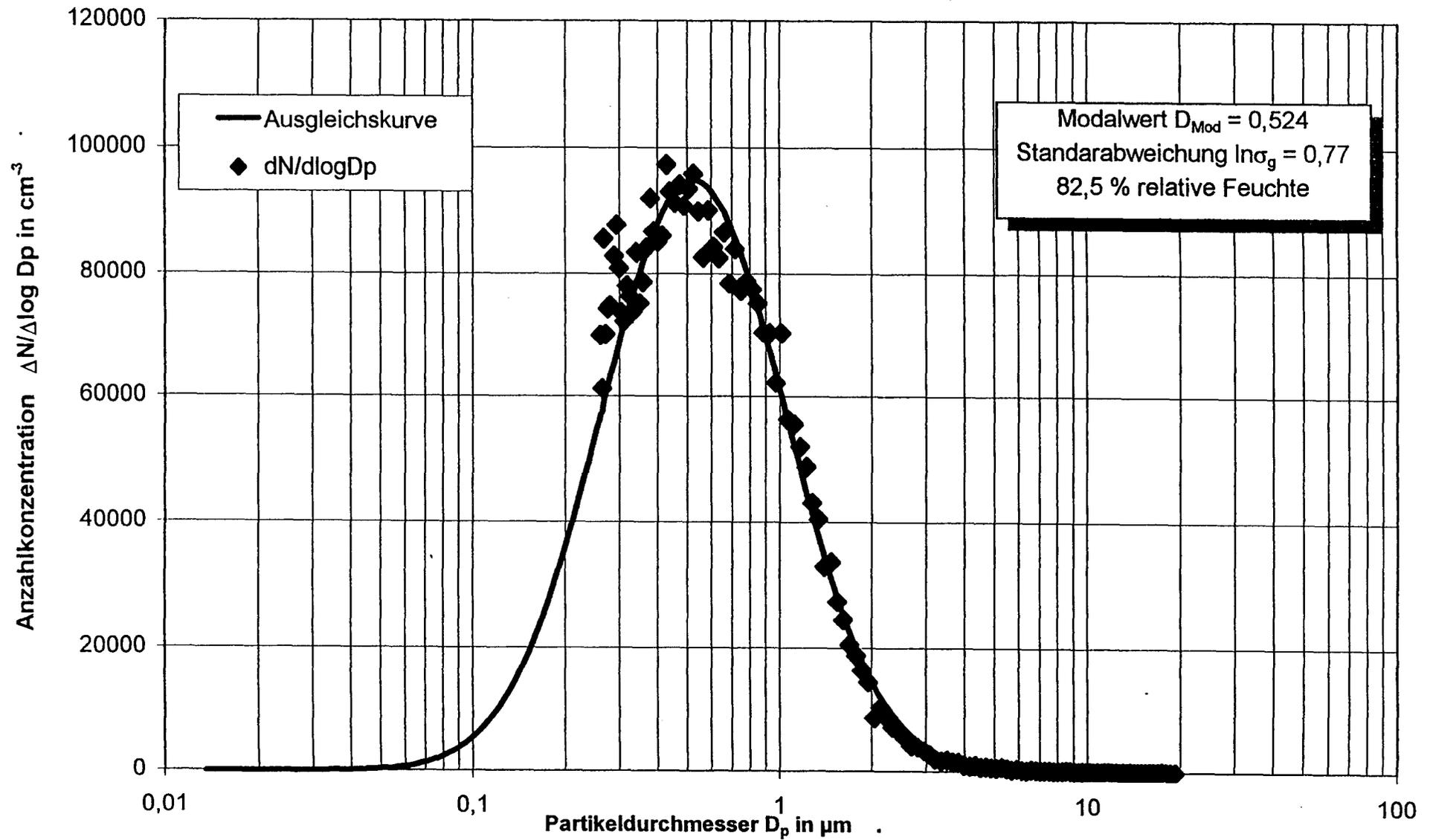


Bild A11. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m³

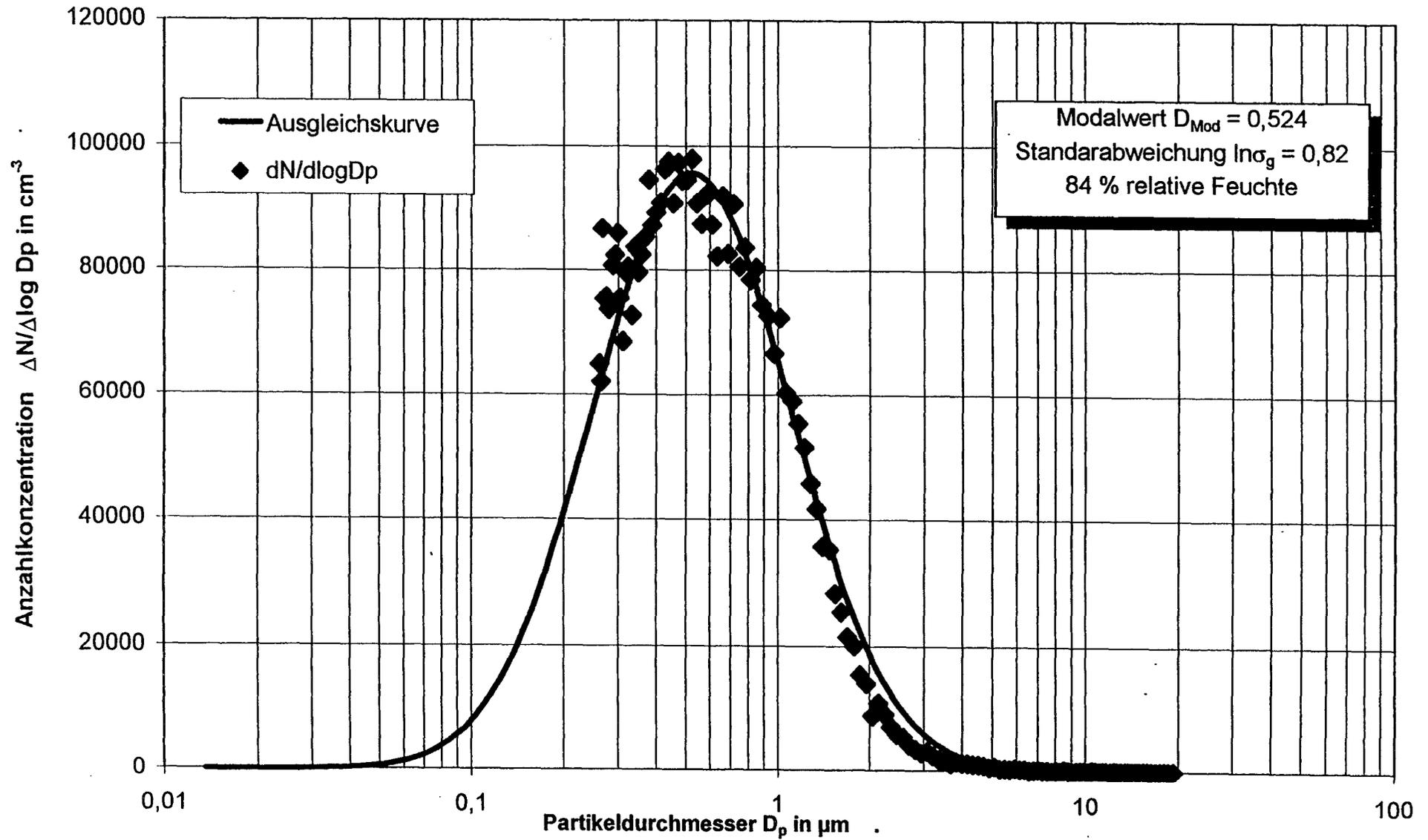


Bild A12. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

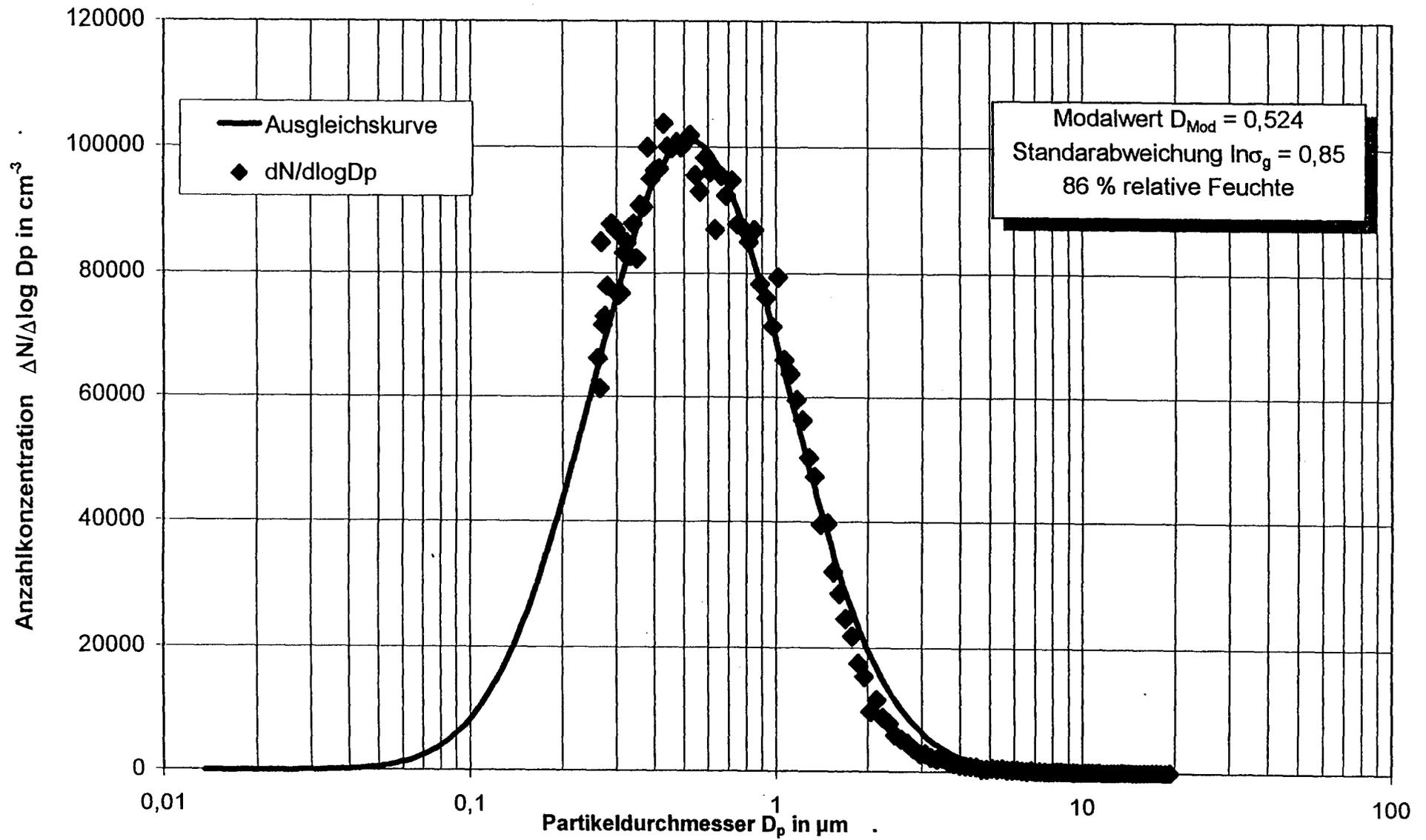


Bild A13. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

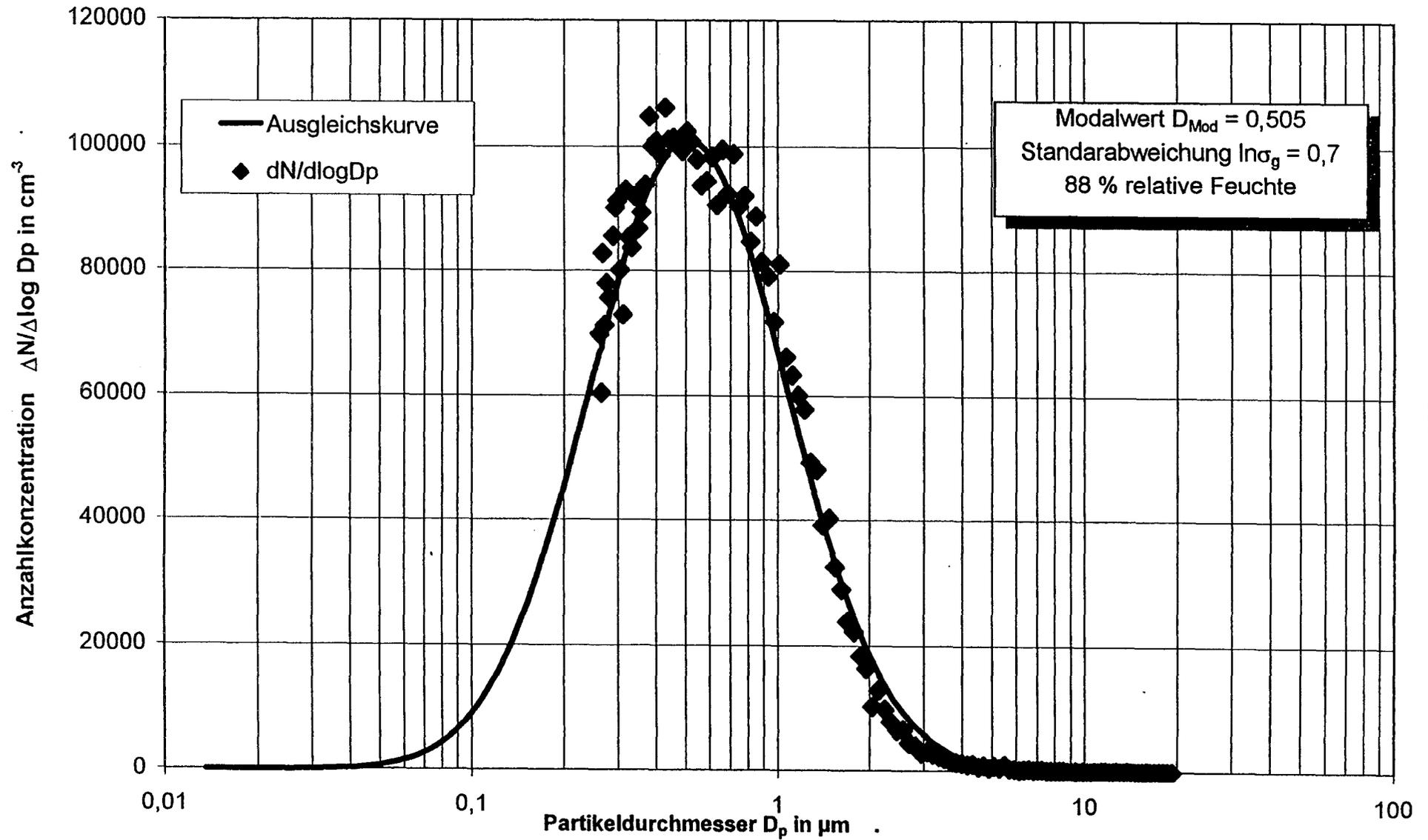


Bild A14. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

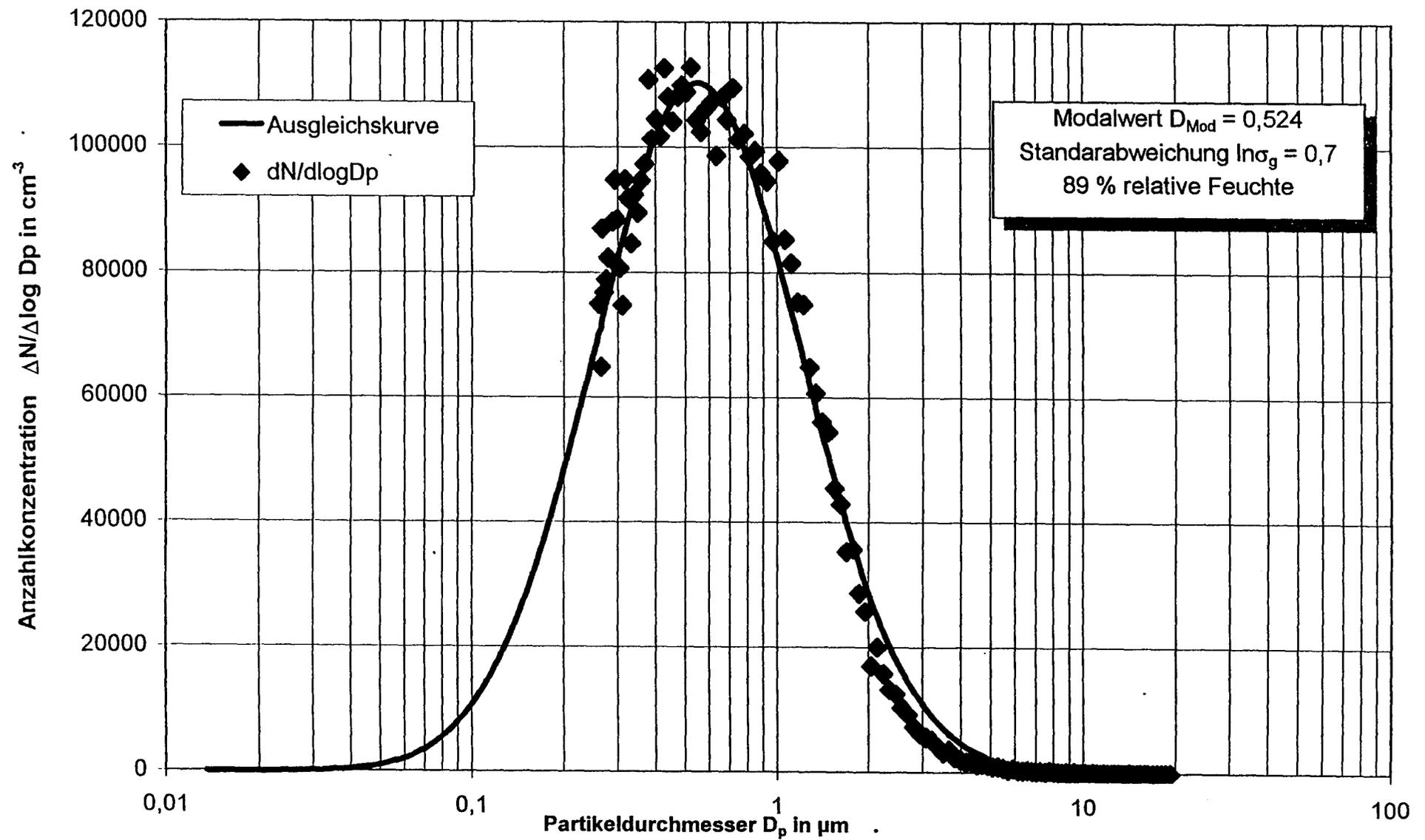


Bild A15. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

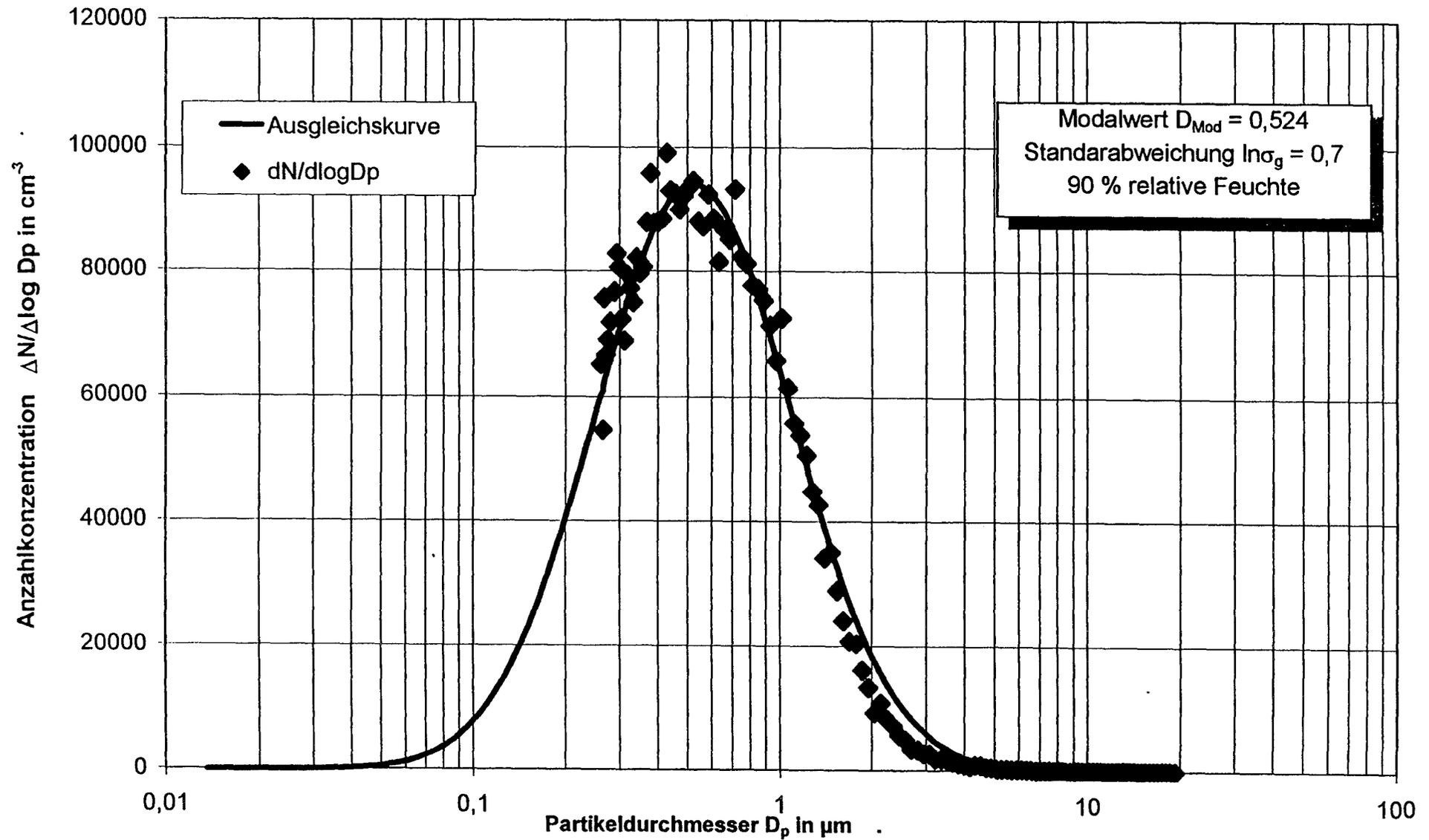


Bild A16. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

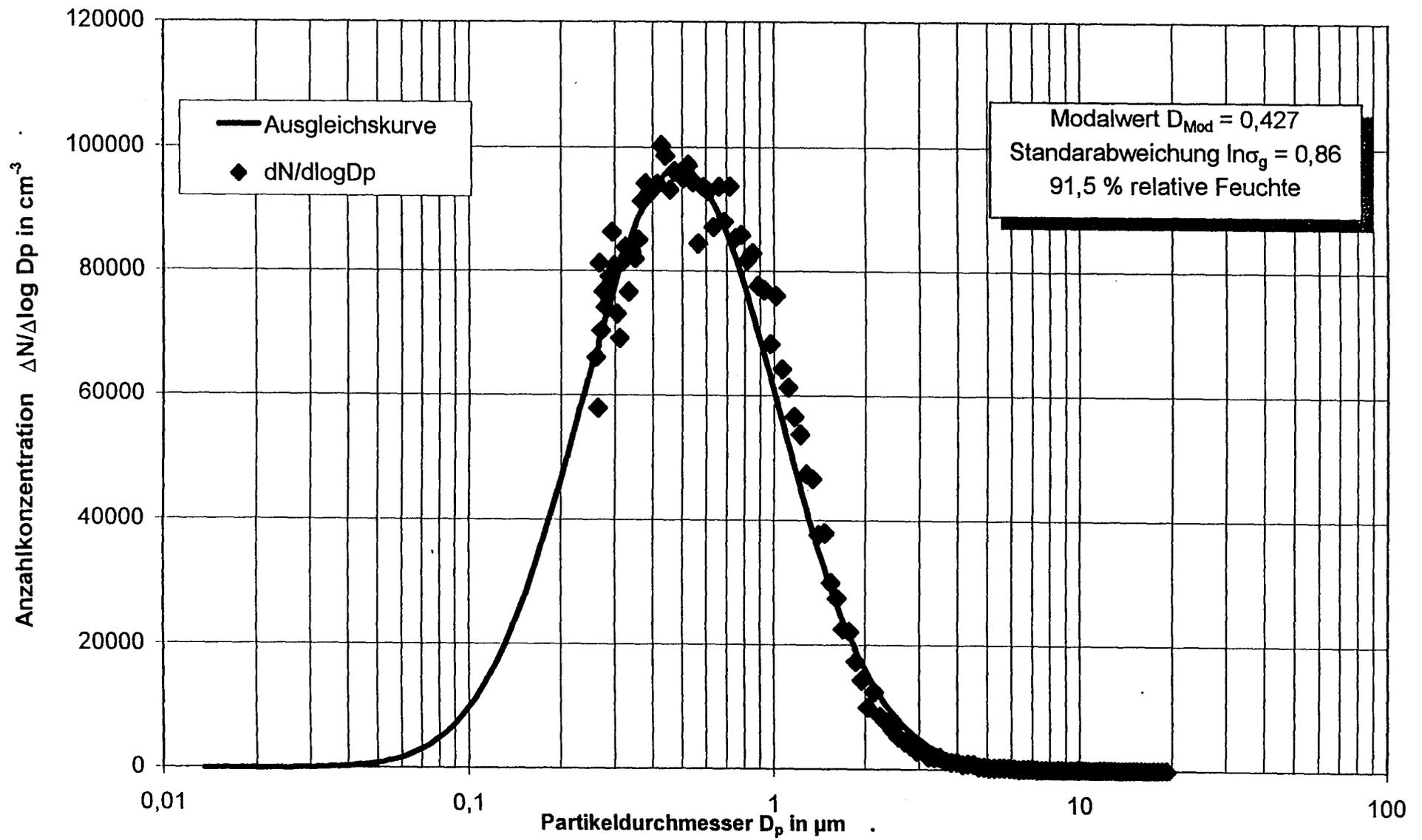


Bild A17. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

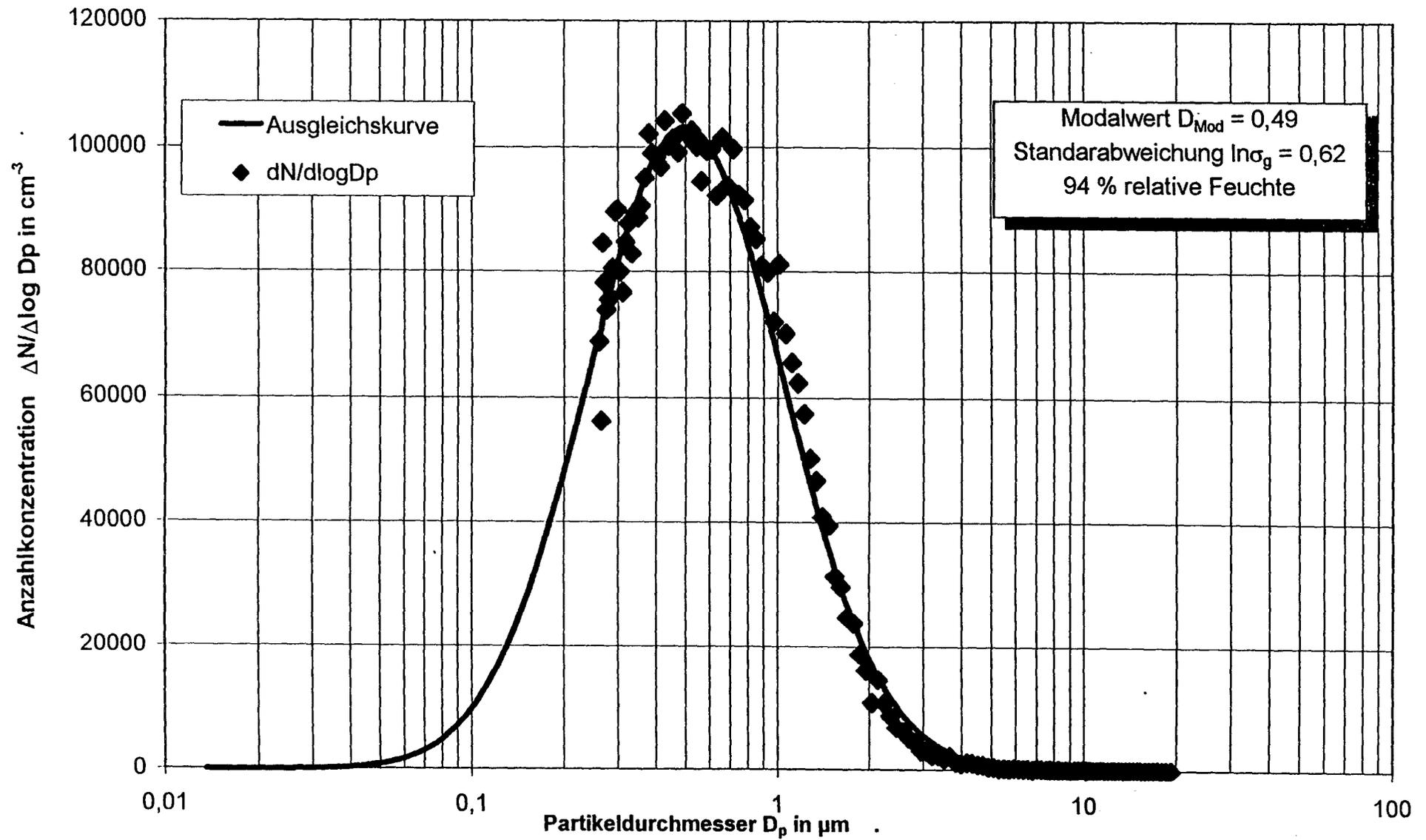


Bild A19. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

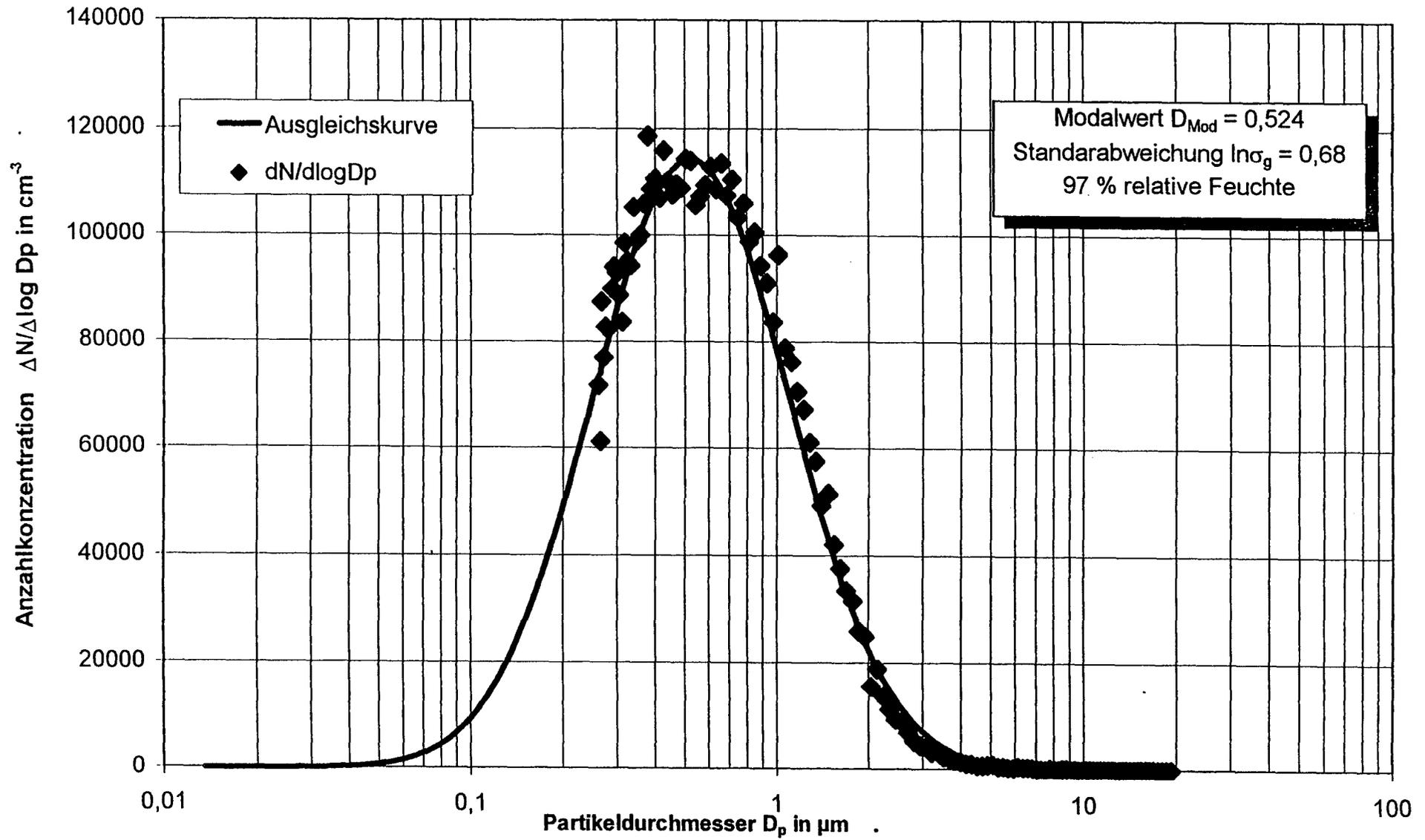


Bild A20. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

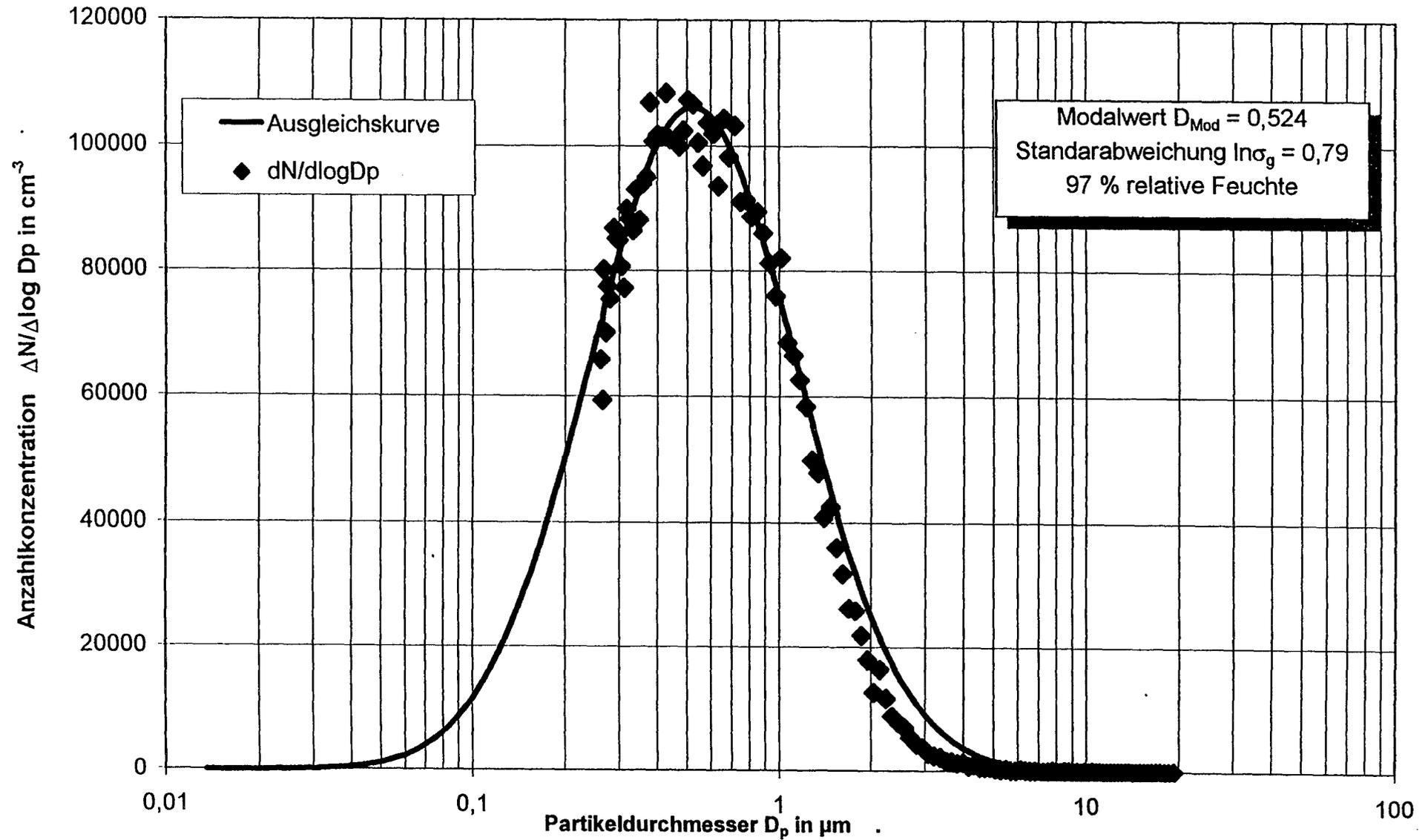


Bild A21. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

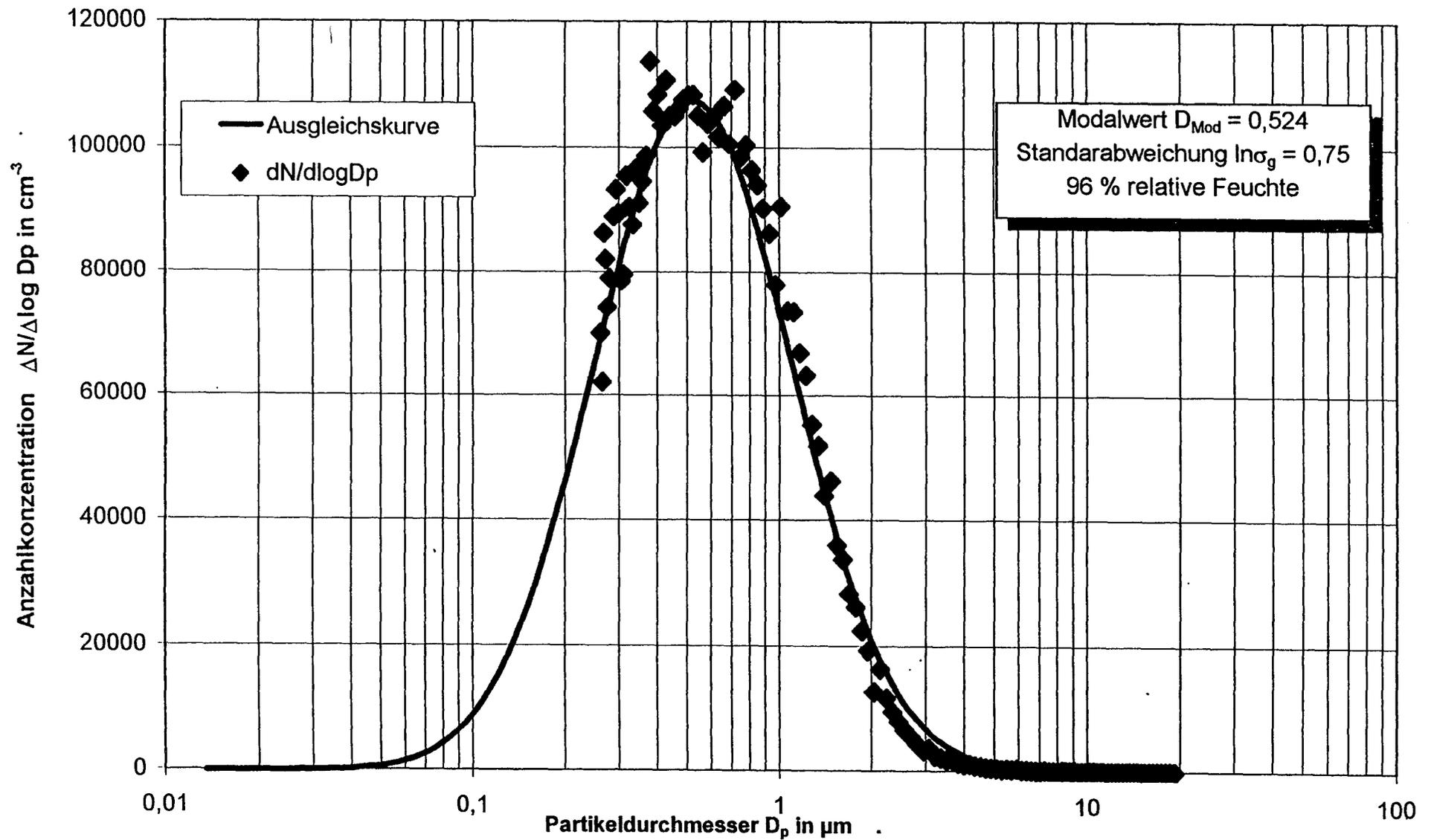


Bild A22. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

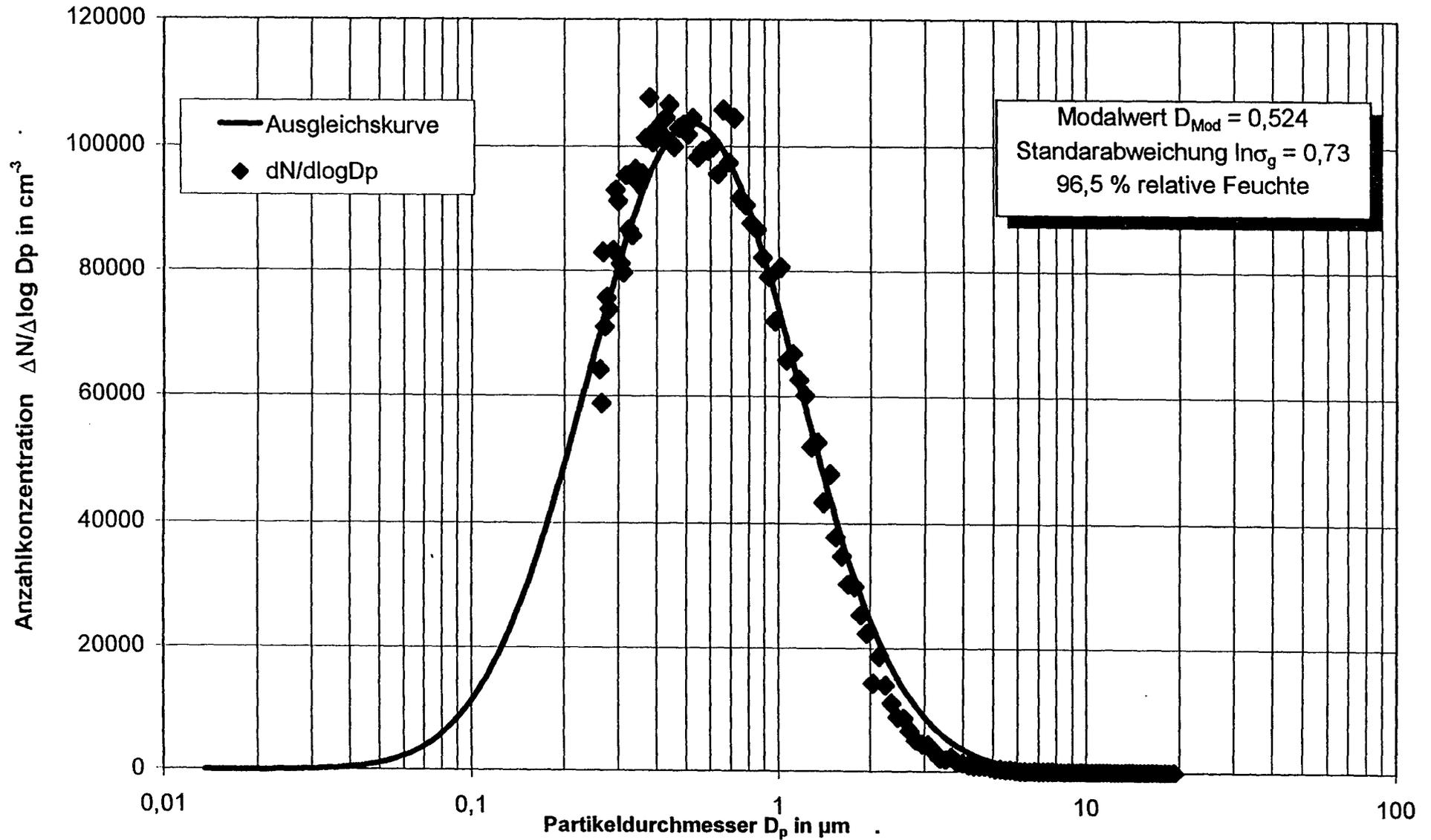


Bild A23. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

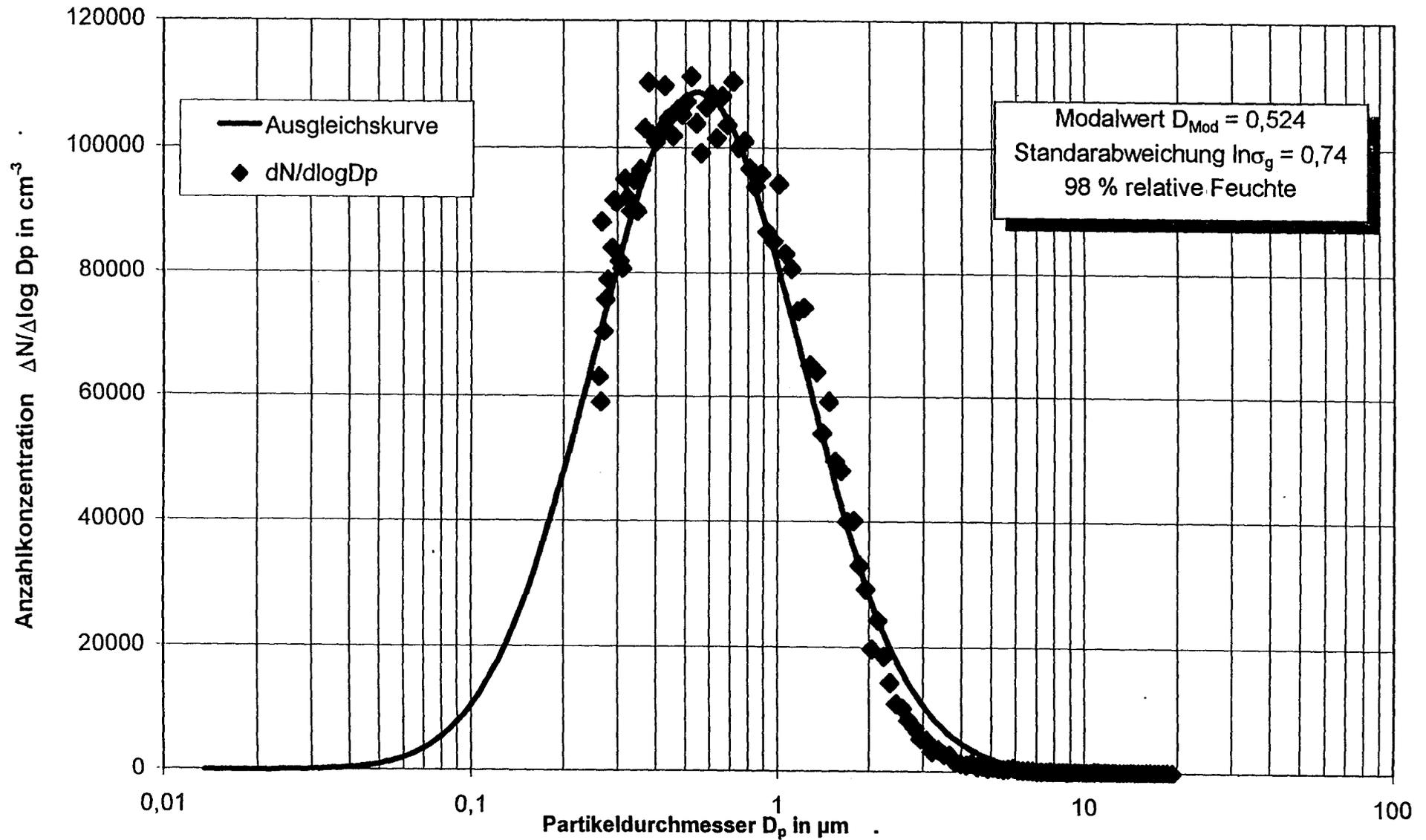


Bild A24. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

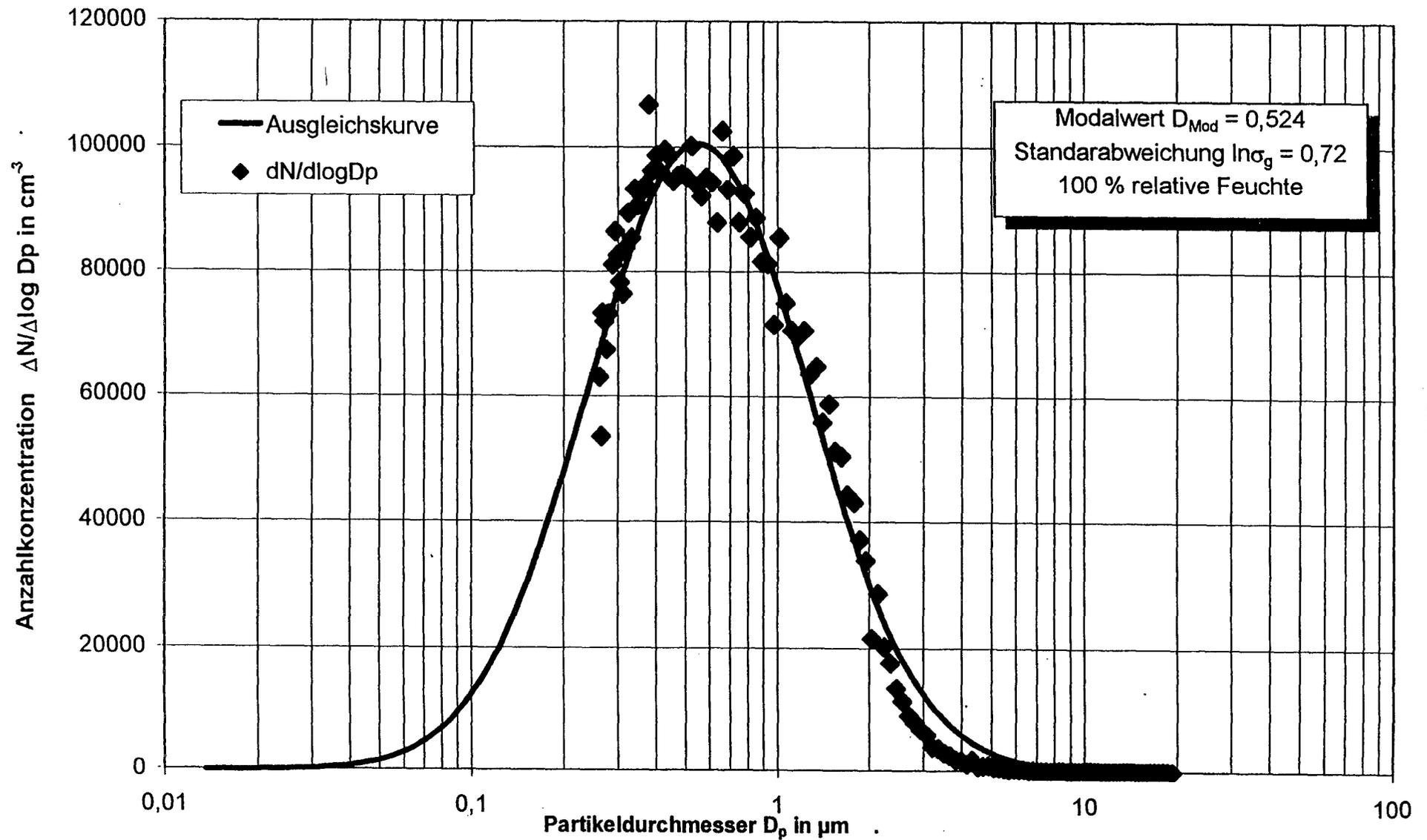


Bild A25. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m^3

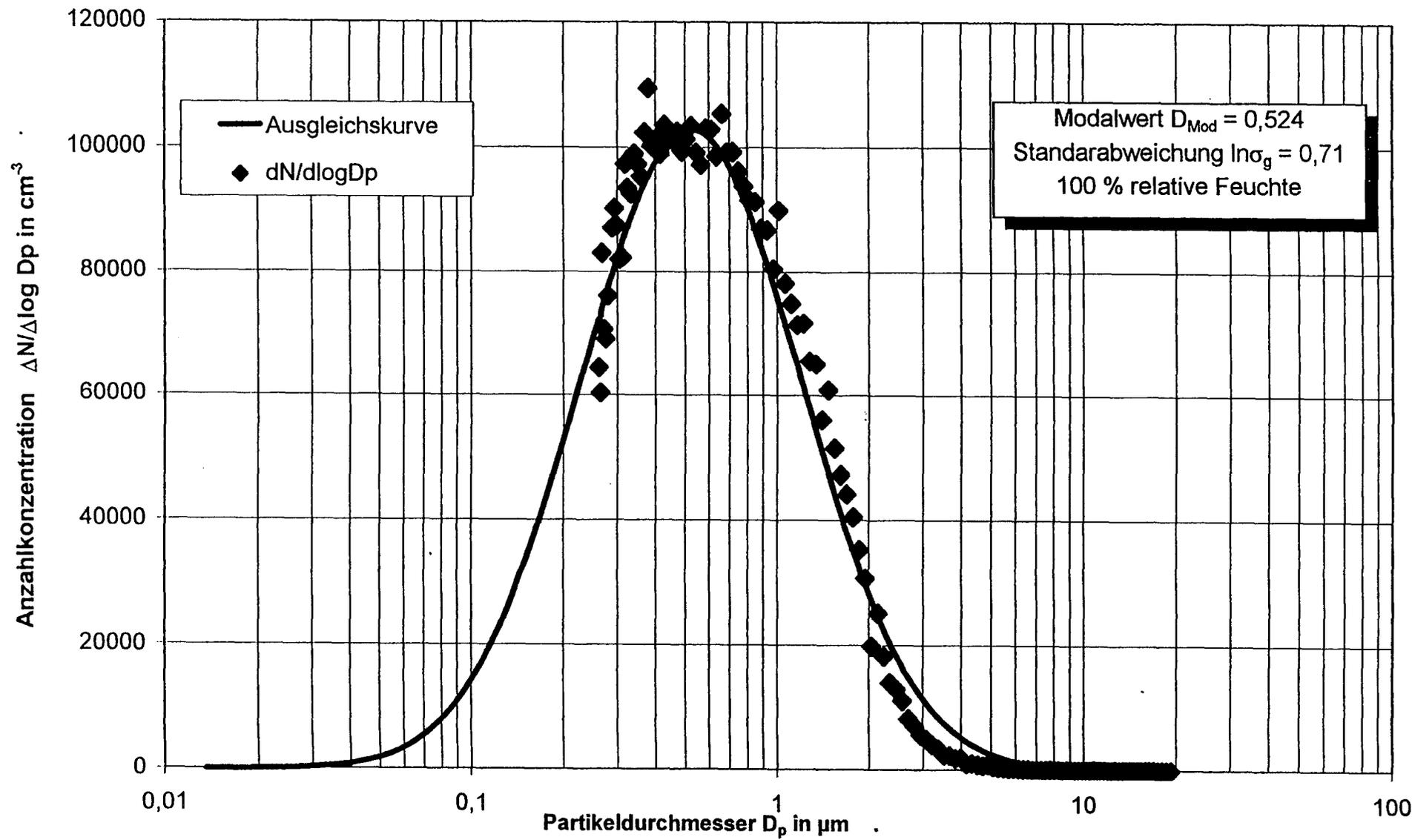


Bild A26. Anzahlverteilungsdichte der Flugaschepartikel in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers bei Anfangsmassenkonzentration von ca. 200 mg/m³