

## Neuer Russgenerator für Verbrennungsrussteilchen zur Kalibrierung von Partikelmessgeräten

**Am EAM wurde eine neue Methode zur reproduzierbaren Erzeugung von Verbrennungsrussteilchen im Submikron-Bereich entwickelt. Damit ist es möglich geworden, solche Teilchen mit variabler Grösse und Konzentration zur Kalibrierung von Russ- bzw. Partikelmessgeräten herzustellen.**

Lianpeng Jing

Zum Aufbau einer Kalibrierbasis für Russmessgeräte wurde am EAM eine neue Methode zum Erzeugen von Verbrennungsrussteilchen entwickelt, die denen aus Verbrennungsmotoren wie z. B. dem Dieselmotor in den wichtigsten Eigenschaften gleichen. Die Grösse und Konzentration der Teilchen entsprechen der Feldsituation und lassen sich dank spezieller Ausführung des Russgenerators kontinuierlich und mit einer Reproduzierbarkeit von  $\pm 5\%$  variieren. Im Vergleich zum Dieselmotor erlaubt der neue Russgenerator eine rationellere und wirtschaftlichere Erzeugung von Verbrennungsrussteilchen mit einfacher und flexibler Arbeitsweise. Zusätzlich ist er auch für die Forschung der Verbrennungsaerosole, die Entwicklung der Partikelmessstechnik und die Prüfung von Partikelfiltern geeignet.

Verbrennungsmotoren und Feuerungsanlagen verursachen neben Abgas- auch Partikelemissionen, die Russteilchen als Hauptbestandteil enthalten. Da Russteilchen als krebs-erregend gelten und somit die Gesundheit gefährden können, gewinnt die Messung der Grösse, der Anzahlkonzentration und der chemischen Zusammensetzung der Partikel immer mehr an Bedeutung [1]. Untersuchungen zeigen, dass gerade die modernen Verbrennungsmotoren (Diesel-, Benzin- und einschliesslich Erdgasmotoren) vor allem unsichtbare Russteilchen unter 200 nm Durchmesser ausstossen [2]. Solche Teilchen, allen voran die ultrafeinen ( $d < 100$  nm), sind so klein und beweglich, dass sie beim Einatmen tief in die Alveolen vordringen. Das damit verbundene Krebsrisiko ist einer der wichtigsten Gründe, weshalb Russemission in Zukunft weiterhin stark reduziert und streng überwacht werden muss. Die

zukünftige Messtechnik muss sich vermehrt auf die ultrafeinen Russteilchen konzentrieren.

Um den Russ im Abgas zu erfassen, interessieren Messgrössen wie Teilchengrösse, Anzahlkonzentration, Partikelmasse, Filterschwärzung, Opazität und Menge bestimmter chemischer Bestandteile wie des elementaren Kohlenstoffes oder der polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK). Es gibt verschiedene Messverfahren, eine oder mehrere dieser Grössen zu bestimmen.

Damit die Resultate der Russmessung mit verschiedenen Instrumenten miteinander vergleichbar sind und reproduzierbar bleiben, müssen Partikelmessgeräte periodisch kalibriert werden. Zur Kalibrierung können im Prinzip künstliche Testaerosole wie Latexaerosole oder Salzaerosole als Normale eingesetzt werden. Solche Testaerosole entsprechen bezüglich ihrer physikalischen und chemischen Eigenschaften aber nicht den Russteilchen aus Abgasen. Auch Testaerosole aus Russ-Zerstäuber und Graphitgenerator [3] stellen ebenfalls keine abgasnahen Normale dar.

### **Aerosol:**

Eine Verteilung feinsten, fester oder flüssiger Teilchen in einem Gas.

Beispiel: Rauch, Nebel.

In der Praxis werden deshalb häufig Dieselmotoren als Russgenerator eingesetzt. Trotz einiger Vorteile als Quelle für Verbrennungsrussteilchen mit hoher Konzentration weist der Dieselmotor auch Nachteile auf. Der Betrieb erfordert grossen Energieaufwand und hohen Platzbedarf. Die Grösse und Konzentration der Russteilchen lassen sich nur begrenzt regulieren. Der Dieselmotor ist nicht hinreichend stabil, um Verbrennungsrussteilchen reproduzierbar zu generieren. Die Charakteristik der Teilchen hängt von vie-

len unkontrollierbaren Parametern sowie von der Abnutzung des Motors ab.

Ein Russgenerator zur Erzeugung von Verbrennungsrussteilchen im Submikron-Bereich ist eine wichtige Voraussetzung für die Entwicklung von abgasorientierten Kalibrierverfahren für Partikelmessgeräte. Im vorliegenden Beitrag wird ein im EAM entwickelter Russgenerator vorgestellt, der weltweit zum ersten Mal diese Voraussetzung erfüllt. Der zum Patent angemeldete Russgenerator erlaubt, die Grösse und Konzentration der Russteilchen kontinuierlich und reproduzierbar einzustellen.

## **Kontrollierte Erzeugung von Verbrennungsrussteilchen**

### **Molekulare Russbildungsmechanismen**

Bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoff ist die gelb-orange Farbe in der Flamme (Kerzenflamme, Gasflamme aus einem Feuerzeug, Lagerfeuer, Waldbrand etc.) oft ein Zeichen dafür, dass in der Flamme Russ vorkommt - das Glühen vom Russ verleiht der Flamme diese vertraute, warme, romantische und in manchen Situationen auch bedrohliche Farbe.

Wie in [4] und [5] beschrieben, liegt die Ursache der Russbildung in unterschiedlichem Diffusionsvermögen der Reaktionspartner in einer Diffusionsflamme.

### **Diffusionsflamme:**

Flamme, bei der Brenngas und Luftsauerstoff nur in der Grenzzone, der sogenannten Flammenfront miteinander reagieren. Die Reaktionsgeschwindigkeit wird durch die Diffusionsgeschwindigkeit von Brenngas und Luft an die Flammenfront bestimmt.

Bei der Verbrennung werden zuerst zahlreiche Wasserstoffatome vom Kohlenwasserstoff (HC) abgespalten

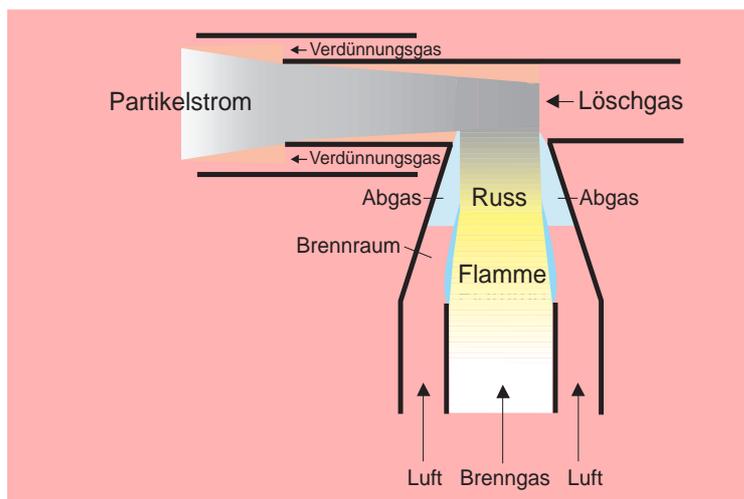
(Dehydrierung). Da der Wasserstoff schneller als andere Teilchen aus dem Brenngas diffundiert, erreicht er die Flammenfront zuerst und wird dort vom Luftsauerstoff oxidiert. Der Abbrand von Wasserstoff an der Flammenfront verhindert das weitere Eindringen des Sauerstoffes in die Flamme und verursacht somit den Sauerstoffmangel in der Flamme. Auf der anderen Seite begünstigt der Abbau des freien Wasserstoffs die Dehydrierung und somit die Kombination des Kohlenwasserstoffs in der Flamme, was zur Bildung von PAK führt. Infolge der Rekombination von PAK und des Oberflächenwachstums entstehen schliesslich annähernd kugelförmige, graphitähnliche Primärteilchen, die sich zur Flammenoberfläche hin bewegen. Die Agglomeration zwischen den Primärteilchen ergeben grössere Russteilchen, die sich durch das Glühen sichtbar machen. Erst in der Nähe der Flammenfront werden Russteilchen wieder oxidiert, weil an dieser Stelle einerseits Oxydatoren wie O und OH reichlich vorliegen und andererseits die Temperatur durch die Oxidation des Wasserstoffs und des Kohlenstoffs stark ansteigt.

## Prinzip und experimenteller Aufbau

Das Prinzip des hier vorgestellten Russgenerators besteht darin, Russteilchen in einer Diffusionsflamme zu erzeugen und anschliessend dadurch zu gewinnen, indem die Sauerstoffzufuhr über einer bestimmten Flammenhöhe unterbunden wird. Die in der Flamme gebildeten Russteilchen können dann als solche die Flamme verlassen, ohne oxidiert zu werden.

Zur Umsetzung dieses Prinzips wird eine partikel-erzeugende Parallelstrom-Diffusionsflamme in einem Brennräum gebildet. Das Brenngas wird dabei von einem Mantel aus synthetischer Luft umgeben. Die Verbrennungsprodukte verlassen den geschlossenen Brennräum durch eine Öffnung über der Flamme (Figur 1).

Durch Einstellen des Flussverhältnisses zwischen dem Brenngas und der synthetischen Luft kann die Diffusionsflamme in einen Zustand gebracht werden, bei dem die Luftmenge im Brennräum die Flamme zwar



Figur 1: Funktionsprinzip des russerzeugenden Brenners.

aufrechtzuerhalten vermag, jedoch nicht mehr ausreicht, die in der Flamme erzeugten Russteilchen vollständig zu oxidieren. Dadurch können aus der Flamme Russteilchen gewonnen werden. Dabei ist der Rauchstrom vom Abgas umhüllt und kommt mit dem Brennräum nicht in Berührung.

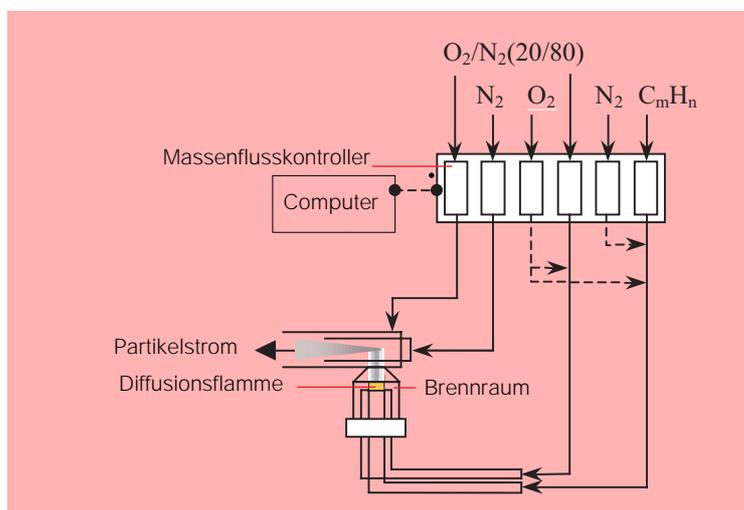
Zum Löschen von weiteren Brennpunkten und zur Stabilisierung der Russteilchen wird dem Rauchgas unmittelbar über dem Brennräum ein Löschgas zugeführt. Die Zufuhr erfolgt in einem rechtwinklig zur Diffusionsflamme angeordneten und mit dem Ausgang des Brennräums verbundenen Rohr. Danach lässt sich das vom Löschgas verdünnte Rauchgas durch Zuführen von Luft noch weiter verdünnen.

Das Löschen der Flamme mit einem Löschgas verdünnt das Rauchgas soweit, dass sich bei Raumtemperatur kein Kondenswasser bildet.

Die Eigenschaften der mit diesem Verfahren erzeugten Russteilchen werden vor allem durch die Gestaltung der Diffusionsflamme beeinflusst. Bei fester Geometrie des Brennräums werden sie hauptsächlich durch folgende Parameter beeinflusst:

1. Flussrate des Brenngases und der Zulufte für die Flamme
2. Zusammensetzung dieser Gase
3. Löschstelle der Diffusionsflamme durch Löschgas

Der Aufbau des Russgenerators ist in Figur 2 vereinfacht dargestellt. Er besteht im Wesentlichen aus drei Komponenten: Brenner, Gasversorgungs- und Regeleinheit mit Computer und Massenflussreglern. Die drei Einheiten sind über dichte Gasleitungen miteinander verbunden. Der Verbrennungsprozess ist von der Umgebung somit vollständig isoliert und kann über die Gaszusammensetzung und die Gasflüsse kontrolliert werden.

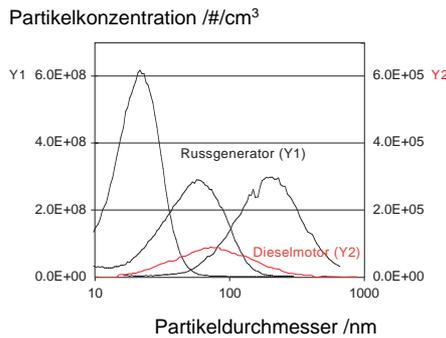


Figur 2: Schematischer Aufbau des Russgenerators.

## Eigenschaften der Russteilchen

In Bild 3 sind Russteilchen vom Russgenerator in einer Aufnahme mit Transmissions-Elektronenmikroskopie wiedergegeben. Zum Vergleich ist eine Abbildung mit Russteilchen aus dem Dieselmotor gegenübergestellt. Beide Aufnahmen zeigen sowohl kompakte als auch ketten- und traubenförmige Agglomerate. Die Untersuchungen mit einem Rasterkraftmikroskop haben ergeben, dass die einzelnen, annähernd kugelförmigen Primärteilchen, aus denen sich die Agglomerate bilden (siehe schematische Darstellung des Russteilchen in Bild 3), Durchmesser zwischen 30-50 nm aufweisen. Dadurch kann man erkennen, dass sich die Russteilchen aus dem Russgenerator morphologisch nicht von jenen aus dem Dieselmotor unterscheiden.

In Figur 4 sind einige Größenverteilungen der vom Russgenerator erzeugten Russteilchen zusammengestellt, die mit Hilfe eines Scanning Mobility Particle Sizers (SMPS, TSI GmbH) ermittelten wurden. Zum Vergleich ist auch eine Größenverteilung von Teilchen aus einem modernen Dieselmotor angegeben. Die Darstellungen zeigen, dass der Russgenerator in der Lage ist, Russteilchen im Submikron-Bereich herzustellen und ihre Grösse kontinuierlich zu variieren. Da bei diesem Verfahren wesentlich weniger Nachoxidation stattfindet als in einem Dieselmotor, liegt die Teilchenkonzentration beim Russ-



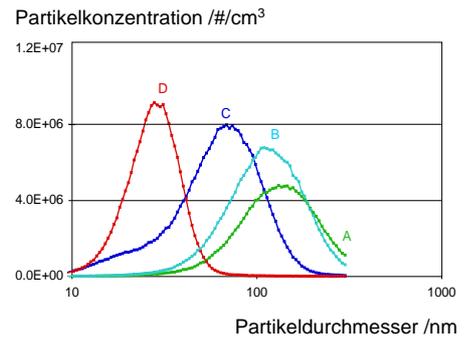
**Figur 4: Grössenverteilungen von Russteilchen aus dem Russgenerator, im Vergleich mit einer Verteilung eines modernen Dieselmotors.**

generator deutlich höher (10- bis 1000-fach) als in Abgasen von Dieselmotoren.

Die Herstellung von Russteilchen mit dem hier vorgestellten Russgenerator zeichnet sich deshalb durch eine hohe Ausbeute aus. Dank der Verdünnung der Abgase kann aus einer verhältnismässig kleinen Diffusionsflamme ein Rauchgasstrom mit grossem Volumendurchsatz erzielt werden.

## Regulierung der Grösse der Russteilchen

Während die Bildung der Primärteilchen durch die Koagulation der Kohlenwasserstoffmoleküle, wird die Grösse der Russteilchen von der Agglomeration der Primärteilchen und deren Agglomerate beeinflusst. Da



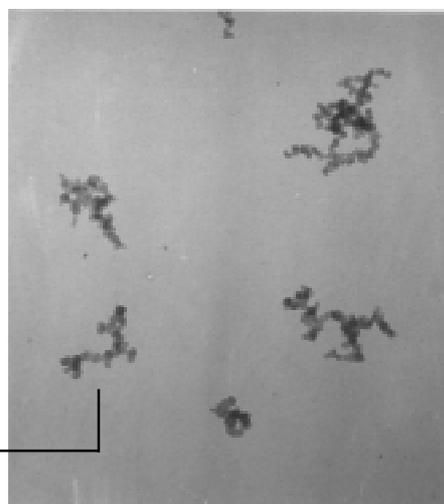
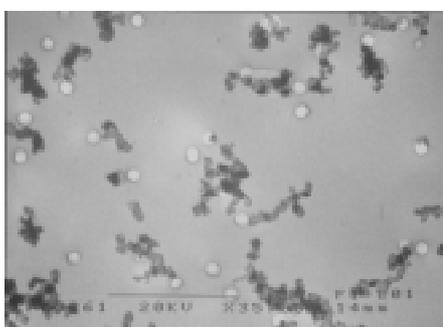
**Figur 5: Veränderung der Grössenverteilung von Russteilchen durch Verdünnen des Brenngases (A-C) und Verringern der Zuluftmenge für die Diffusionsflamme (D).**

sich die Häufigkeit der Zusammenstösse zwischen Russteilchen durch das Verdünnen des Brenngases herabsetzen lässt, wird ihre Grösse durch die Verdünnung verkleinert. Ausserdem spielen die Menge sowie der Sauerstoffanteil der synthetischen Luft um die Diffusionsflamme herum eine wichtige Rolle. Daher können sie als weitere Steuergrössen zur Beeinflussung der Eigenschaften der Russteilchen eingesetzt werden.

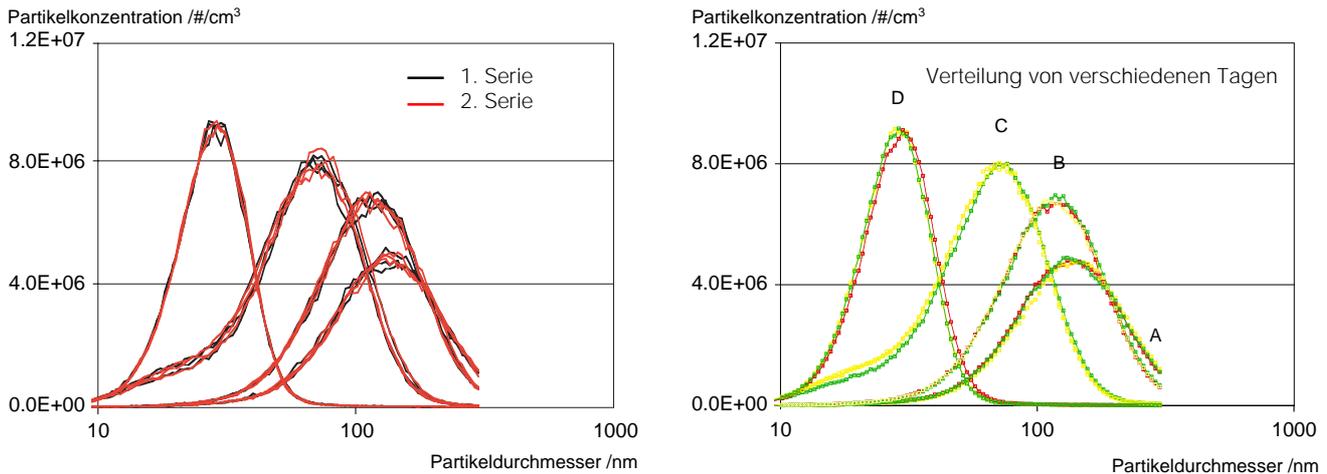
In Figur 5 sind Größenverteilungen zusammengestellt, welche vom Russgenerator durch die Änderung des Verdünnungsverhältnisses vom Brenngas (Betriebspunkt A-C) bzw. durch die Reduzierung der Zuluftmenge (Betriebspunkt D) erzeugt worden sind. Die Reduzierung der Zuluftmenge verschiebt die Grössenverteilung der Russteilchen deutlich zu kleineren Durchmessern. Da die Einstellung der Flüsse stufenlos erfolgt, kann die Grössenverteilung kontinuierlich im Submikron-Bereich verschoben werden.

## Stabile Russerzeugung und Russteilchengrösse

Die Stabilität der Russerzeugung lässt sich durch den Vergleich der Grössenverteilungen von Russteilchen aufzeigen, die zu verschiedener Zeit bei den gleichen Betriebspunkten erzeugt wurden. Zwischen den Messungen, die in grösseren Zeitabständen erfolgten, wurde der Russgenerator vollständig abgeschaltet. Nach dem Wiedereinschalten ist die Anlage sofort wieder betriebsbereit.



**Bild 3: Russteilchen aus dem Dieselmotor (links) im Vergleich mit Russteilchen aus dem Russgenerator.**



**Figur 6: Reproduzierbarkeit der Erzeugung von Russteilchen.**

Sowohl für kurze als auch für grosse Zeitabstände wurden keine signifikanten Veränderungen der Grössenverteilung festgestellt. Die Verteilungen in Figur 6 zeigen, dass sie über längere Zeitabstände konstant bleiben. Die Reproduzierbarkeit der Partikelgrösse und Anzahlkonzentration für Messungen in Minuten-Abständen sowie an verschiedenen Tageszeiten liegt unter 2% der Standardabweichung und für Messungen, die an verschiedenen Tagen durchgeführt wurden, unter 5%.

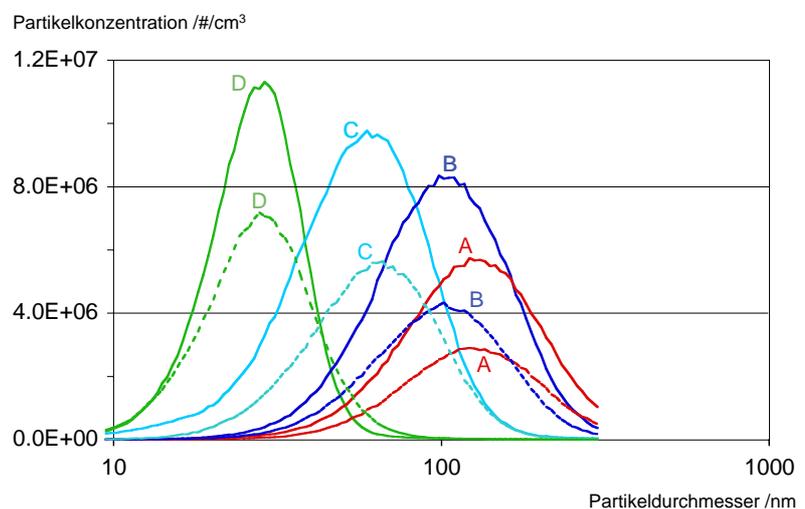
Neben Reproduzierbarkeit von Grösse und Anzahl wurde auch die Stabilität der Verteilung beim Verdünnen der Rauchgase untersucht. Bei einem geeigneten Flussverhältnis zwischen dem Löschgas und dem Rauchgas konnte man feststellen, dass das der Löschung nachgeschaltete Verdünnen des Rauchgases mit Luft keinen Einfluss auf die Grössenverteilung ausübt (Figur 7). Die Untersuchungen zeigen, dass der neue Russgenerator in der Lage ist, eine Konzentrationsreihe von Russteilchen mit gleichbleibenden Eigenschaften zu Kalibrierzwecken herzustellen.

## Zusammenfassung

Der neue Russgenerator ermöglicht die Erzeugung von Verbrennungsrussteilchen, welche denen aus motorischer Verbrennung in den wichtigsten Eigenschaften entsprechen. Die Charakteristik der erzeugten Russteilchen lässt sich durch das Einstellen weniger Parameter festlegen bzw. verändern. Aufgrund der starren Konstruktion des Russgenerators, der klar

definierten Brennbedingungen sowie der geringen Verunreinigung im Brennraum ist die Reproduzierbarkeit der Teilchen sehr gut. Bei geeigneter Löschgasmenge bietet der Russgenerator dank seiner hohen Ausbeute die Möglichkeit, verschiedene Konzentrationen für die Kalibrierung von Partikelmessgeräten und andere Anwendungen herzustellen. Dabei verändert sich die Grössenverteilung der erzeugten Russteilchen nicht. Im Vergleich zum Dieselmotor ist die Reproduzierbarkeit der Russerzeugung mit dem vorgestellten Verfahren besser. Es erlaubt eine rationellere und wirtschaftlichere Arbeitsweise mit einfacherer und flexiblerer Bedienung und ruhigem Arbeitsumfeld ohne

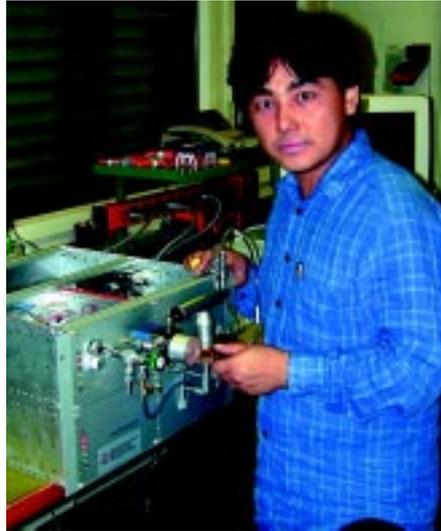
Lärmemissionen. Der Russgenerator ist neben der Kalibrierung von Partikelmessgeräten auch für die Forschung mit Russteilchen und die Entwicklung von Messverfahren geeignet. Des Weiteren kann er auch für die Prüfung von Partikelfiltern eingesetzt werden. Nicht zuletzt ist zu erwähnen, dass der Russgenerator auch als Abgassimulator eingesetzt werden kann, indem zusätzliche Abgaskomponenten dem Löschgas beigemischt werden. Der Russgenerator hat das Potential, die Russerzeugung und Russmessung für Forschungs- und Kalibrierzwecke auf eine bisher nicht verfügbare, solide metrologische Grundlage abzustützen. ■



**Figur 7: Grössenverteilungen der vom Russgenerator erzeugten Russteilchen vor und nach der Verdünnung des Rauchgasstroms.**

## Referenzen

- [1] Projekt VERT (**V**erminderung der **E**missionen von **R**eal-Dieselmotoren im **T**unnelbau), 1994-2000, SUVA, AUVA, TBG, BUWAL unter Leitung A. Mayer
- [2] Proceedings of the International ETH-Workshop on Nanoparticle Measurement, 1997, 1998, 1999
- [3] C. Helsper, W. Mölter and G. Wenninger, *Investigation of a New Aerosol Generator for the Production of Carbon Aggregate Particles*, *Atmospheric Environment* Vol. 27A, No. 8, pp. 1271-1275, 1993
- [4] L. Jing, *Charakterisierung der dieselmotorischen Partikelemission*, Dissertation 1997, Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern
- [5] L. Jing, *Neue Erkenntnisse bei den Russpartikelemission von Dieselmotoren*, OFMETInfo Vol 4, No. 1997, pp.21-22



Besonderen Dank möchte der Autor den folgenden Institutionen aussprechen: ETH, EAM, BUWAL, SUVA, ASTRA und EMPA.

Lianpeng Jing, Dr. phil. nat.  
Erfinder des neuen Russgenerators, seit 1992 in Zusammenarbeit mit EAM, Spezialgebiet: Messung und Erzeugung von Verbrennungsaerosolen  
Direktwahl: +41 (0)31 323 33 69  
lianpeng.jing@eam.admin.ch

Dans le but de créer une base d'étalonnage pour les appareils mesureurs de suie, on a mis au point une nouvelle méthode de production de particules de suie inférieures au micromètre en suspension dans l'air. Leurs caractéristiques principales correspondent à celles des particules émises par les moteurs diesel. La concentration et le calibre des particules remplissent les exigences pratiques. Une construction spéciale et un contrôle du gaz permettent de faire varier ces paramètres sur une grande étendue avec une reproductibilité typique de  $\pm 5\%$ . Comparé au moteur diesel, le nouveau générateur de suie permet une production plus rationnelle et plus économique de particules tout en étant plus simple et plus flexible à employer. De plus il convient aussi pour la recherche sur les aérosols de combustion, le développement de techniques de mesure de suies et l'examen de filtres.

Per l'allestimento di una base di taratura per apparecchi misuratori di fumo è stato messo a punto all'UFMET un nuovo sistema di produzione di particelle di combustione che, per le proprietà più importanti, sono analoghe a quelle dei motori a combustione quale ad esempio i motori diesel. Le dimensioni e la concentrazione delle particelle corrispondono alla situazione reale e, grazie ad uno speciale dispositivo del generatore di particelle, sono facilmente variabili con una riproducibilità di  $\pm 5\%$ . Rispetto al motore diesel, il nuovo generatore di particelle di fumo permette una produzione più razionale ed economica di particelle di combustione con un metodo di lavoro più semplice e più flessibile. Inoltre si presta molto bene alla ricerca su aerosol combustibili, allo sviluppo di tecniche di misurazione di particelle e all'esame di filtri per particelle.

In order to establish a calibration basis for soot measuring instruments, a new method was developed for generating air suspended sub-micron combustion soot particles which correspond to the particles from diesel engine in the most important characteristics. The particle size and the number concentration meet the demands in field situations and can be varied, due to a special construction an gas control, in a wide range within a reproducibility to typically  $\pm 5\%$ . In comparison to the diesel engine, the new soot generator allows a more rational and more economical production of soot particle with simpler and more flexible operation. Additionally, it is appropriate also for purposes such as the research of combustion aerosols, the development of soot measuring technique and the testing of particle filter.