Fachtagung "Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik"

5. - 7. September 2006, Braunschweig

BESTIMMUNG DER ANZAHLVERTEILUNG VON TRACERPARTIKELN

Dipl.-Ing. (FH) Leander Mölter

Palas[®] GmbH, Greschbachstr. 3b, 76229 Karlsruhe, E-Mail: mail@palas.de, Internet: www.palas.de

Zusammenfassung/Einleitung

Optische Messmethoden wie z.B. die Laser-Doppler-Anemometer (LDA), Particle-Image-Velocimeter (PIV) etc. werden seit Jahrzehnten mit großem Erfolg zur Geschwindigkeitsmessung von z.B. Gasströmungen eingesetzt. Für LDA- und/oder PIV-Messungen und zur Strömungssichtbarmachung werden sehr oft so genannte Tracerpartikel benötigt.

Mit den o. g. Messmethoden wird die Geschwindigkeit der Partikel unter der Annahme ermittelt, dass die Partikel praktisch ohne Schlupf der Strömung folgen. Die Partikel müssen also zur Erfüllung dieser Forderung klein sein. Sie müssen des Weiteren gute Streueigenschaften haben, damit das eingebrachte Licht vom Partikel gut gestreut wird und dieses gut detektiert werden kann.

In erster Näherung ist das gestreute Licht proportional zum Quadrat des Partikeldurchmessers, weshalb der Tracerpartikeldurchmesser nicht zu klein sein darf. Sind z.B. bei Laser-Doppler-Anemometrie die Parameter

- Wellenlänge des Lasers
- Detektionswinkel
- Interferenzstreifenabstand
- Größe des Messvolumens
- Volumenstrom im Strömungskanal

und die gewünschte Datenrate bekannt, so kann zum optimalen Impfen der Strömung mit

Tracerpartikeln der hierfür notwendige Partikelstrom (N = Partikel pro sek) abgeschätzt werden.

Die Tracerpartikel werden mit Aerosolgeneratoren entweder aus Pulvern als feste Partikel oder aus Flüssigkeiten als Tröpfchen erzeugt.

Zur Charakterisierung von Aerosolgeneratoren bieten zählende Messverfahren wie z.B. optische Aerosolspektrometer besondere Vorteile, da mit diesen die Anzahlverteilung eines Aerosols bestimmt wird. Bei der Messung mit einem optischen Aerosolspektrometer (OAS) ist der vom Einzelpartikel gestreute Lichtimpuls ein Maß für das Partikelmerkmal, den Partikeldurchmesser. Zur Partikelmengenbestimmung werden zeitgleich die gemessenen Streulichtimpulse gezählt. Mit einem hochauflösenden OAS kann der Partikelstrom sogar pro Größenklasse zuverlässig bestimmt werden. Aus der mit einem OAS gemessenen Partikelanzahlverteilung kann zuverlässig die Volumenverteilung berechnet werden.

Zu den Messverfahren, die den mittleren Partikeldurchmesser am Partikelkollektiv bestimmen, gehören z.B. die Fraunhofer Spektrometer. Mit diesen Messverfahren wird die Volumenverteilung des Partikelkollektives bestimmt. Bei der gemessenen Volumenverteilung wird das Gesamtvolumen der Partikel pro Größenklasse angegeben. Diese Messverfahren haben relativ wenige Größenklassen (z.B. 32) über den gesamten Messbereich. Eine Anzahlverteilung kann mit diesen Messverfahren praktisch nicht bestimmt werden.

In diesem Aufsatz werden der technische Aufbau und die Funktion eines optischen Aerosolspektrometers beschrieben, mit dem eine hochaufgelöste Anzahlverteilung eines Aerosols bestimmt werden kann. Die Auswirkungen der Gerätekenngröße, der Randzonenfehler, einer nicht eindeutigen Kalibrierkurve und der Koinzidenzfehler auf die Partikelgrößen- und Partikelmengenbestimmung werden erläutert.

Ein Aerosolspektrometer ist nicht mit einem so genannten "Reinraumzähler" zu verwechseln. Letzterer soll die Partikelanzahl in reinen Räumen – also in niedrigen Konzentrationen – in kurzer Zeit bestimmen, wobei die Partikelgrößenbestimmung nicht exakt sein muss. Ein Aerosolspektrometer hingegen wird dann eingesetzt, wenn ein hochkonzentriertes Aerosol bezüglich der Partikelgröße und Partikelanzahl möglichst eindeutig charakterisiert werden soll. Zurzeit wird ein ISO-Standard für optische Aerosolspektrometer (ISO-CD 21501-1) und für Reinraumzähler (ISO-DIS 21501-4) erarbeitet.

1. Theoretische Grundlagen zu optischen Aerosolspektrometern

Das Messverfahren optischer Aerosolspektrometer basiert auf der Lorentz-Mie-Theorie. Das Partikelmerkmal, der Durchmesser, wird durch die Impulshöhenanalyse des Streulichtes am kugelförmigen Einzelpartikel bestimmt. Die Partikelanzahl wird gleichzeitig durch die Anzahl der Streulichtimpulse bestimmt.

Trifft Licht mit der Wellenlänge λ auf ein kugelförmiges Partikel mit dem Durchmesser x und dem Brechungsindex m, so wird das Licht in verschiedene Richtungen gestreut (Abb. 1). Die Streuung von Licht am Partikel wird verursacht durch Beugung, Brechung und Reflexion. Die Polarisationsebene der einfallenden Lichtwelle wird ebenfalls gedreht.





Die Intensität I des an den Einzelpartikeln gestreuten Lichtes ist abhängig von der einfallenden Lichtintensität I₀, dem Polarisationswinkel Φ , dem Detektionswinkel des Streulichtes Θ , dem Brechungsindex m, der Lichtwellenlänge λ und dem Partikeldurchmesser x.

$$I = I_0 \cdot f (\Phi, \Theta, m, \lambda, x)$$

Durch den von G. Mie eingeführten Streuparameter

$$\alpha = \frac{\pi \cdot \mathbf{x}}{\lambda}$$

wird das Verhältnis von Kugelumfang $\pi \cdot x$ zur Wellenlänge λ in die oben stehende Formel eingesetzt:

$$I = I_0 \cdot f(\Phi, \Theta, m, \alpha)$$

Bezüglich der partikelgrößenabhängigen Streuleistung lassen sich mit der Einführung des Streuparameters α drei Bereiche unterscheiden:

- **Rayleigh-Bereich**: α << 1; hier steigt die Streuleistung mit der 6. Potenz des Partikeldurchmessers. Ein Partikel mit einem Durchmesser von 0,1 μm streut 64-mal weniger Licht als ein Partikel mit einem Durchmesser von 0,2 μm.
- **Mie-Bereich**: 0,1 ≤ α ≤ 10; hier ist der Zusammenhang zwischen Streulichtintensität und Partikelgröße nicht eindeutig (Abb. 2). Mit Weißlicht und 90° Streulichtdetektion ist dieser Zusammenhang hingegen eindeutig (Abb. 3).
- **Fraunhofer bzw. Geometrischer Bereich**: $\alpha >> 1$ (ab $\alpha \approx 10$). Hier gilt der quadratische Zusammenhang zwischen Streuleistung und Partikeldurchmesser.



Um mit einem Aerosolspektrometer die Partikelgrößenverteilung möglichst exakt bestimmen zu können, ist eine eindeutige Kalibrierkurve, wie sie in Abb. 3 dargestellt ist, eine entscheidende Voraussetzung. OAS werden vom Hersteller üblicherweise mit monodispersen Latex-Aerosolen mit einem Brechungsindex von m = 1,59 kalibriert. Weitere geeignete Kalibrierverfahren, wie z.B. die aerodynamische Kalibrierung, sind von Rainer Friehmelt beschrieben.

2. Fehlerquellen bei der Messung mit optischen Aerosolspektrometern

Optische Messvolumenabgrenzungen werden in der Praxis eingesetzt, um von der Gauss'schen Intensitätsverteilung des Laserlichtes unabhängig zu sein oder um in hohen Konzentrationen die Partikelgrößenverteilung möglichst koinzidenzfrei bestimmen zu können. Dabei müssen die folgenden möglichen Fehlerquellen berücksichtigt werden:

2.1. Randzonenfehler

Abb. 4 zeigt den Detailaufbau des Messvolumens eines OAS mit Laserlicht und ohne optische Messvolumenabgrenzung.



Abb. 4: Messprinzip: Laserstrahl



Die Lichtintensität des Laserlichtstrahles ist über den Strahldurchmesser Gauss-förmig verteilt (Abb. 5). Ein Partikel am Rand des Laserstrahles streut erheblich weniger Licht als ein ebenso großes Partikel in der Mitte des Laserstrahles. Dieser so genannte Randzonenfehler ist bereits seit 1970 bekannt. Dieser Fehler kann durch eine aerodynamische Fokussierung des Aerosolstrahls minimiert werden.

Wird eine optische Messvolumenabgrenzung gewählt, um z.B. die Auswirkung der Gauss-Verteilung eines Laserstrahls zu minimieren, so tritt ein weiteres Randzonenproblem auf. In Abb. 6 ist eine optische Messvolumenabgrenzung dargestellt, an welcher das Problem des Randzonenfehlers verdeutlicht werden kann. Ein Partikel, das in der Randzone nur zu 50% beleuchtet wird, streut nur die Hälfte des Lichtes eines ebenso großen Partikels aus, das sich in der Messvolumenmitte befindet. Daher führt der Randzonenfehler dazu, dass die Partikel zu klein gemessen werden. In der Filterprüfung hat dies zur Folge, dass der Abscheidegrad besser gemessen wird, als er tatsächlich ist, da das Korngrößenspektrum im Rohgas mit einem zu hohen Feinanteil gemessen wird.





Von oben betrachtet:



1,70

2,10

3,40

Dp[um]

0,055

Abb. 7: Randzonenfehler bei optischer Messvolumenabgrenzung (Summenverteilung verschiedener monodisperser Aerosole), Quelle: Helsper 1981

Abb. 6: Messprinzip: optische Volumenabgrenzung, 90° Streulichtdetektion

Abb. 7 zeigt am Beispiel von monodispersen Prüfaerosolen, dass die Größe des Randzonenfehlers von der Partikelgröße abhängig ist. Je breiter die zu messende Partikelgrößenverteilung, desto größer ist auch der Randzonenfehler.

2.2. Koinzidenz

Vom Koinzidenzfehler wird gesprochen, wenn sich mehr als ein Partikel gleichzeitig im Messvolumen befindet. Beträgt z.B. ein Laserstrahldurchmesser 1 mm, so kann damit maximal in einer Konzentration von 1000 Partikel pro cm³ mit vernachlässigbarem Koinzidenzfehler gemessen werden, da der Partikelabstand hier theoretisch 1 mm beträgt. Mehrere Partikel im Messvolumen liefern einen höheren Streulichtimpuls, daher führt die koinzidenzbehaftete Partikelmessung zu zwei Fehlern: Die Partikel werden zu groß und die Konzentration wird zu niedrig gemessen. Bei der Umrechnung von der Anzahlverteilung in die Volumenverteilung wirken sich diese Fehler besonders stark aus. In der Filterprüfung führt dies dazu, dass der Abscheidegrad schlechter gemessen wird, als er tatsächlich ist.

Eine wichtige Voraussetzung für eine exakte und zuverlässige Filterprüfung ist daher eine Messung ohne Randzonenfehler und mit Koinzidenzerkennung.

3. Partikelmessung ohne Randzonenfehler und mit Koinzidenzerkennung

Das neue **Weißlicht-Aerosolspektrometer welas**[®] hat durch die Weißlichtquelle und die 90° Streulichtdetektion eine eindeutige Kalibrierkurve (s. Abb. 3). Sechs verschiedene Kalibrierkurven für unterschiedliche Brechungsindizes können auf Wunsch mitgeliefert werden. Mit dem optischen Aufbau des Geräts und seinem patentierten T-förmigen Messvolumen, mit dem praktisch ohne Randzonenfehler gemessen wird, ist eine eindeutige Partikelgrößenbestimmung mit sehr gutem Auflösungsvermögen und sehr guter Klassifiziergenauigkeit gewährleistet.

Die Messkammer ist optional beheizbar, um Querempfindlichkeiten und Partikelgrößenänderungen in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte zu vermeiden – ein wichtiger Punkt, denn durch eine Änderung der relativen Luftfeuchte von ca. 40 % auf 90 % können z.B. hydrophile Partikel wie NaCI-Partikel bis um den Faktor 2 anwachsen.



Abb. 8: Querschnitt durch den welas[®]-Sensor



Abb. 9: Dreidimensionales T-förmiges Messvolumen

In Abb. 8 ist der Aufbau des kompakten welas[®]-Sensors dargestellt. Über Lichtwellenleiter wird weißes Licht in den Aerosolsensor eingekoppelt und mit einer T-Blende T-förmig im Messvolumen fokussiert. Im Winkel von 90° zum einfallenden Licht wird das Streulicht über eine T-Blende beobachtet. Durch den T-förmigen Lichtstrahl und die T-förmige Beobachtungsebene erhält man ein dreidimensionales T-förmiges Messvolumen (Abb. 9).

Da das Aerosol mit einer Vakuumpumpe durch den Sensor gesaugt wird und die Größe des Messvolumens exakt bekannt ist, ist die Flugzeit zwischen Ein- und Austritt der Partikel ins Messvolumen bekannt.

3.1. Kein Randzonenfehler durch T-Blenden-Technik

In Abb. 10 ist der jeweilige Impulsverlauf dreier gleich großer Partikel in Abhängigkeit von der Position ihrer Flugbahn durch das Messvolumen dargestellt. Ausgewertet werden die Signale von Partikel 1 und Partikel 2, da die Impulslänge der vorgegebenen Flugzeit der Partikel durch das Messvolumen entspricht. Das Signal von Partikel 3 wird verworfen, da die Impulslänge kürzer als die vorgegebene Flugzeit ist.

Dank des T-förmigen Messvolumens wird der Randzonenfehler ausgeschlossen (siehe auch Kapitel 2.1 und Abb. 6), da ein Partikel, das am äußersten Rand des Messvolumens flöge, ebenso wie Partikel 3 verworfen wird, weil die Flugzeit zu kurz wäre.



Abb. 10: Ortsabhängige Impulsformen der Partikel im T-Messvolumen

3.2 Koinzidenzanzeige mittels T-Blenden-Technik

Fliegen mehrere Partikel gleichzeitig durch das Messvolumen (Abb. 11), so kann man sich leicht vorstellen, dass die Impulshöhe höher ist als bei nur einem Partikel von vergleichbarer Größe. Ohne Koinzidenzerkennung würden hier die Partikel zu groß und die Konzentration zu niedrig gemessen.

Beim welas[®]-System (Abb. 11) wird durch die Laufzeitmessung der Koinzidenzfehler erkannt (der Impuls ist zu lang) und durch ein akustisches und/oder optisches Warnsignal angezeigt.

Nur eine koinzidenzfreie Partikelmessung ermöglicht eine zuverlässige Partikelgrößen- und Partikelanzahlbestimmung des Aerosols. Der Anwender ist selbst dafür verantwortlich, gemäß der Messaufgabe ein Partikelmessgerät mit der richtigen Messvolumengröße einzusetzen, um möglichst koinzidenzfrei zu messen. Durch den patentierten modularen Aufbau des welas[®]-Systems kann je nach Messproblem bezüglich der zu messenden Partikelkonzentration der optimale Sensor mit der optimalen Messvolumengröße ausgewählt werden.



Abb. 11: Koinzidenzbestimmung: Partikelflug durch das optische T-Messvolumen und Auswertung der Signalhöhe und Signallänge



Abb. 12: Tri-modale Partikelgrößenverteilung

3.3 Auswertung der Streulichtsignale

Die Auswertung der Streulichtimpulse erfolgt beim welas[®]-System über die in der Technik bekannten grundlegenden Formeln der Fehlerrechnung bzw. Statistik. Das von den einzelnen Partikeln erzeugte Streulicht liefert gleichzeitig eine Information über die Anzahl (Einzelpartikelanalyse) und die Größe der Partikel, wobei die Höhe des Streulichtimpulses ein Maß für den Durchmesser und die Anzahl der Impulse ein Maß für die Menge der Partikel ist.

Je besser die Klassifiziergenauigkeit und das Auflösungsvermögen eines Partikelmessgerätes sind, desto schmaler kann die Merkmalsklasse gewählt werden. Beim welas[®]-System können deshalb die Merkmalsklassen sehr eng gewählt werden. Grundsätzlich stehen zur Auswertung 4096 Größenklassen zur Verfügung. Die Größenklassen werden in 32 Kanäle pro Dekade zusammengefasst. Der Anwender kann sich am Computer die Größenverteilungen in 32, 16, 8 oder 4 Größenklassen pro Dekade anzeigen lassen.

Durch diese hohe Auflösung können mit dem welas[®] 1100 auch tri-modale Partikelgrößenverteilungen hochkonzentrierter Tröpfchenaerosole $d_p < 2 \mu m$ gemessen werden, wie in Abb. 12 dargestellt. Es handelt sich hier um den Ölnebel eines Kühlmittelschmierstoffes.

Zur Darstellung der Partikelgrößenverteilung werden weder eine komplizierte Mathematik noch undurchschaubare Algorithmen verwendet. Die Streulichtimpulse der gemessenen Partikel werden über die eindeutige Kalibrierkurve direkt den Größenklassen zugeordnet (Abb. 12). So wird z.B. die Summenverteilung nach folgender Formel berechnet:

Summenverteilung Q_r(x)

 $Q_{r}(x) = \frac{Menge \ q \ der \ gemessenen \ Partikel \leq x}{Gesamtmenge \ der \ Partikel \ q_{ges}}$ $Q_{r}(x_{i}) = \frac{\sum_{i=1}^{n} q_{i}}{q_{ges}}$ x = Partikelgrößer = Mengenmaß

Berechnung der Dichteverteilung $q_r(x)$: $q_r(x) = \frac{Menge \Delta q (dq) der gemessenen Partikel im Intervall \Delta x (dx)}{Gesamtmenge der gemessenen Partikel <math>q_{ges} \cdot Intervallbreite \Delta x (dx)}$

Formal mathematisch gilt:

$$q_r(x) = \frac{dQ_r(x)}{dx} \qquad Q_r(x') = \int_{x_{\min}}^{x'} q_r(x) dx$$

Die Mengenart: r = 0 : Anzahl r = 1 : Länge r = 2 : Fläche r = 3 : Volumen

Literatur

- [1] Mie, G.: Beugung an leitenden Kugeln. In: Annalen der Physik 15, 1908, S. 377-445.
- [2] Friehmelt, R.: Aerosol-Messsysteme. Vergleichbarkeit und Kombination ausgewählter online-Verfahren. Diss. 1999.
- [3] Gebhart, J. et al.: Vergleichsmessungen an optischen Partikelzählern. In: Staub Reinhaltung der Luft 43 (1983), S. 439-447.
- [4] Broßmann, R.: Die Lichtstreuung an kleinen Teilchen als Grundlage einer Teilchengrößenbestimmung. Diss. Universität Karlsruhe (TH) 1966.
- [5] Helsper, C.: Bestimmung, Simulation und Korrektur des nichtidealen Übertragungsverhaltens klassifizierender Aerosolmessverfahren. Diss. Universität Duisburg 1981.
- [6] Mölter, L., Keßler, P.: Grundlagen der Partikelgrößen- und Partikelanzahlbestimmung in der Au-Benluft mit zählenden Messverfahren. In: Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft 7/8 (2004).
- [7] Lindenthal, G., Mölter, L.: New White-Light Single-Particle Counter Border Zone Error nearly eliminated. In: Proceedings of Partec 1998.
- [8] Helsper, C., Mölter, L.: Erzeugung von Prüfaerosolen für die Kalibrierung von optischen Partikelmessverfahren nach VDI 3491. In: Technisches Messen – tm 56 (1989), Nr. 5, S. 229-234.
- [9] Peters, C., Gebhardt, J., Roth, C., Sehrt, S.: Test of high sensitive laser particle counters with PSL-Aerosols and CNC reference. Journal of Aerosol Science, Vol. 22, Suppl.1, 1991.
- [10] Mölter, L., Keßler, P.: Partikelgrößen- und Partikelanzahlbestimmung in der Außenluft mit einem neuen optischen Aerosolspektrometer. In: Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft 10 (2004).
- [11] Rudolph, A., Peters, C.: Partikelgrößenermittlung in Aerosolen. In: Chemische Technik 5 (1991).