



universität  
wien

# DIPLOMARBEIT

Titel der Diplomarbeit

Irreversible Massenzunahme von Filtern bei hoher relativer Feuchte

angestrebter akademischer Grad

Magistra der Naturwissenschaften (Mag. rer.nat.)

Verfasserin / Verfasser:	Teresa Torzicky
Matrikel-Nummer:	0402421
Studienrichtung (lt. Studienblatt):	Diplomstudium Physik (A 411)
Betreuerin / Betreuer:	Ao. Univ.-Prof. Dr. Regina Hitzenberger
Wien, am	21.09.2009

# Irreversible Massenzunahme von Filtern bei hoher relativer Feuchte

Diplomarbeit zur Erlangung des akademischen Grads  
Magistra der Naturwissenschaften  
an der Fakultät für Physik  
Universität Wien

Eingereicht von

Teresa Torzicky

September 2009

# Kurzfassung

Luftqualität ist ein Parameter, der sowohl Gesundheit als auch Lebensqualität der Menschen stark beeinflusst. Aus diesem Grund gibt es gesetzliche Richtlinien, die Grenzwerte für Luftschadstoffe wie zum Beispiel Ozon und Schwefeldioxid und auch für die Aerosolmassenkonzentration festlegen. Aerosolmassenkonzentrationen in der Atmosphäre werden bestimmt, indem ein bekanntes Luftvolumen durch einen Filter gesogen wird, der vor und nach dem Beladen gravimetrisch vermessen wird. Aus dem dadurch ermittelten Massenwert des abgeschiedenen Aerosols kann in weiterer Folge die Aerosolmassenkonzentration in der Atmosphäre berechnet werden.

Um hohe Luftqualität zu gewährleisten, werden Grenzwerte immer wieder diskutiert und angepasst. Ein limitierender Faktor hierbei ist die Messgenauigkeit der gravimetrischen Messungen, die von verschiedenen Faktoren wie Temperatur, relative Feuchte und Druck beeinflusst wird. Aus diesem Grund werden Standardverfahren zur Durchführung dieser gravimetrischen Bestimmungen festgelegt, um den Einfluss von Schwankungen dieser Faktoren zu minimieren. Die momentan vorgeschriebenen Werte der relativen Feuchte im Messraum liegen bei  $50\% \pm 5\%$ . Untersuchungen über die Wasseraufnahme an Aerosolpartikeln haben ergeben, dass der Wassergehalt der Aerosolpartikel mit sinkender relativer Feuchte abnimmt. Eine Absenkung des vorgeschriebenen Feuchtwerts für gravimetrische Bestimmungen erscheint daher sinnvoll, um die Genauigkeit der Aerosolmassenbestimmung der Luftschadstoffe zu erhöhen. Andererseits wurde das Verhalten von Filtermaterialien abhängig von der relativen Feuchte bisher noch nicht systematisch untersucht und unerwünschte Effekte können daher nicht ausgeschlossen werden.

Inwieweit bei der Absenkung der vorgeschriebenen relativen Feuchte unerwünschte Effekte auftreten oder nicht, soll in der vorliegenden Arbeit mit Hilfe von experimentellen Untersuchungen für verschiedene Filtermaterialien festgestellt werden.

Zu diesem Zweck werden Celluloseester-, Celluloseacetat-, Cellulosenitrat-, Glasfaser-, Quarzfaser- und Polycarbonatfilter in einer Feuchteammer untersucht. Bei den Messungen werden die Filter jeweils für 24 Stunden einer relativen Feuchte von zuerst 30%-40%, dann 50% und schließlich 90% ausgesetzt. Im Anschluss wird die relative Feuchte in der Kammer in 24 Stundenabständen wieder auf 50% und anschließend auf 30%-40% abgesenkt. Während der gesamten Messdauer wird die Masse der Filter in 5 Minutenintervallen bestimmt, um zu untersuchen, ob irreversible Massenzunahme auftritt, d. h. dass die Masse eines Filters durch dauerhafte

Adsorption von Wasserdampf nicht mehr auf den Ausgangswert zu Beginn des Experiments zurückkehrt.

Bei Quarzfaser-, und Cellulosenitratfiltern kann keine signifikante irreversible Massenzunahme nachgewiesen werden, während Celluloseester-, Celluloseacetat- und Glasfaserfilter irreversible Massenzunahme zeigen. Die höchste irreversible Massenzunahme zeigen Celluloseacetatfilter mit bis zu 3mg und Glasfaserfilter mit durchschnittlich 0,5mg sowie Celluloseesterfilter mit durchschnittlich 0,4mg. Bei Polycarbonatfiltern kann man beobachten, dass die irreversible Massenzunahme von der Porengröße abhängt. Polycarbonatfilter mit  $8\mu\text{m}$  Porengröße zeigen keine signifikante irreversible Massenzunahme, während bei Polycarbonatfiltern mit  $0,2\mu\text{m}$  eine irreversible Massenzunahme von durchschnittlich 0,5mg verzeichnet wird.

Gemäß den hier vorliegenden Ergebnissen scheint eine Herabsetzung des vorgeschriebenen Werts der relativen Feuchte von 50% auf 30% bei gravimetrischen Messungen zur Bestimmung der Aerosolmassenkonzentration nicht sinnvoll, da durch das Auftreten von irreversiblen Massenzunahmen bei verschiedenen Filtermaterialien die Genauigkeit der gravimetrischen Messungen nicht gesteigert werden kann.

# Abstract

Air quality is a factor significantly influencing human health and quality of life. Therefore legal frameworks require air quality standards for air pollutants such as ozone, sulfur dioxide and the aerosol mass concentration (PM). To determine the aerosol mass concentration in the atmosphere, a known air volume is drawn through a filter, which is weighed before and after loading. The weighing allows the determination of the aerosol deposit mass on the filter, hence the aerosol mass concentration can be calculated.

To guarantee high air quality, adjustments of the standard values are currently under consideration. A limiting factor for changing these thresholds is the accuracy of the gravimetric measurements, which depends on parameters like temperature, pressure and relative humidity. Therefore measurement protocols are prescribed to ensure that variations in those parameters do not adversely affect the measurements. Currently the prescribed value for relative humidity is 50%+/-5%. Studies concerning the water uptake of aerosols have shown, that the water uptake by aerosol particles decreases with decreasing relative humidity. Hence, reducing the prescribed relative humidity may improve the accuracy of the mass measurements of particulate matter. However, the impact of the reduction of the prescribed relative humidity on the filters themselves has not been systematically examined yet and therefore a reduction of the prescribed value might have also undesirable effects.

The purpose of this thesis is to examine the influence of a reduction of the prescribed value of relative humidity on filter materials regarding irreversible water uptake.

Therefore polycarbonate, glass fibre, quartz fibre, cellulose nitrate, cellulose acetate, and cellulose ester filters are examined in a humidity chamber. To detect irreversible water uptake, each filter material is exposed to different relative humidity values for 24 hours. Each measurement cycle commences with 30%-40% of relative humidity, which is subsequently raised to 50% and 90%, and subsequently lowered again to 50% and 30%-40%. Each measurement cycle takes at least five days. The filter mass is recorded regularly during the whole measurement cycle at 5 minute intervals.

Quartz fibre and cellulose nitrate filters do not show any significant water uptake at all. On the other hand for cellulose ester, cellulose acetate and glass fibre filters significant irreversible water uptake can be observed. The highest irreversible water

uptake of up to 3mg is measured for cellulose acetate filters. Glass fibre filters show an average irreversible water uptake of 0,5mg and cellulose ester filters of 0,4mg. For polycarbonate filters the results indicate that irreversible water uptake depends on the pore size. Filters with a pore size of  $8\mu\text{m}$  have no significant irreversible water uptake, whereas filters with a pore size of  $0,2\mu\text{m}$  show an average water uptake of 0,5mg.

According to these results, decreasing the prescribed value of relative humidity for gravimetric measurements from 50% to 30% to determine aerosol mass concentration may not increase accuracy in general, as some filter materials show irreversible water uptake caused by the reduction of the relative humidity standard value.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Aufgabenstellung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretischer Hintergrund</b>	<b>4</b>
2.1	Wichtige Größen und ihre Definition . . . . .	4
2.2	Lösungen - Physikalische Beschreibung und thermodynamisches Verhalten . . . . .	7
2.3	Filtration . . . . .	13
2.3.1	Wichtige Definitionen und Größen . . . . .	13
2.3.2	Physikalische Beschreibung der Abscheidemechanismen an Filtermaterialien . . . . .	18
2.3.3	Filterklassen und deren Eigenschaften . . . . .	27
2.4	Gravimetrische Massenbestimmung und Messprotokolle . . . . .	32
2.4.1	Messprotokolle und Standards . . . . .	33
2.4.2	Störeinflüsse und Korrekturfaktoren . . . . .	34
<b>3</b>	<b>Messaufbau und Vorbereitungen</b>	<b>37</b>
3.1	Verwendetes Messprotokoll . . . . .	37
3.2	Herstellung der Salzlösungen . . . . .	39
3.3	Beschreibung der Feuchtekammer . . . . .	40
3.4	Verwendete Geräte: Waage, Feuchte- und Temperaturfühler . . . . .	42
3.4.1	Waage . . . . .	42
3.4.2	Feuchte- und Temperaturfühler . . . . .	43
3.5	Beschreibung der Programme . . . . .	44
<b>4</b>	<b>Messungen</b>	<b>46</b>
4.1	Nullpunktmessungen . . . . .	48
4.2	Vermessene Filtermaterialien und ihre Eigenschaften . . . . .	57
4.2.1	Quarzfaserfilter . . . . .	59
4.2.2	Glasfaserfilter . . . . .	59
4.2.3	Polycarbonatfilter(klein) . . . . .	60
4.2.4	Polycarbonatfilter(groß) . . . . .	61
4.2.5	Celluloseesterfilter . . . . .	61
4.2.6	Celluloseacetatfilter . . . . .	62

4.2.7	Cellulosenitratfilter . . . . .	62
4.2.8	Teflonfilter . . . . .	63
4.3	Vergleich der Ergebnisse von verschiedenen Filtermaterialien . . . . .	64
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Schlussfolgerungen</b>	<b>66</b>
5.1	Zusammenfassung und Vergleich mit Aufgabenstellung . . . . .	66
5.2	Verbesserungsmöglichkeiten des Messaufbaus . . . . .	67



# Kapitel 1

## Einleitung und Aufgabenstellung

Dass atmosphärische Aerosole auf verschiedene Weise Einfluss auf die Menschen, ihre Gesundheit und ihren Lebensraum nehmen, ist spätestens seit Ereignissen wie dem großen Nebel in London von 1952 [29] bekannt. Seit damals ist eine nähere Untersuchung der atmosphärischen Aerosole, sowie ihrer Entstehung und ihren Auswirkungen auf die Menschen von großem Interesse.

Zahlreiche Studien, wie zum Beispiel INTERCOMP2000 [1] wurden und werden über Aerosolmessmethoden gemacht und auch die Auswirkung von Aerosolen auf die menschliche Gesundheit ist Thema zahlreicher Studien (EXPOLIS [2], "6 Cities"-Studie [3]). Da bei solchen Studien oft mehrere Forschungseinrichtungen involviert sind, ist die Vergleichbarkeit der Messresultate von großer Bedeutung. Um diese Vergleichbarkeit zu gewährleisten, müssen einheitliche Größen zur Beschreibung des Aerosols definiert werden und Standardvorgehensweisen für die Messungen festgelegt werden.

Eine wichtige Größe, die auch als Maß für die Luftqualität herangezogen wird, ist die Aerosolmassenkonzentration, die auch als PM (particulate matter)-Konzentration bezeichnet wird. Die Bestimmung der PM-Konzentration erfolgt indem eine bekannte Menge atmosphärische Luft durch einen Filter gezogen wird und die Aerosolpartikel dabei aus dem Luftstrom abgeschieden werden. Die Masse der abgeschiedenen Aerosolpartikel wird durch Wägen des Filters, vor und nach dem Beladen, ermittelt.

Da bei PM-Konzentrationsmessungen die Aerosolmasse oft nur einem Tausendstel der Filtermasse entspricht [4], ist eine hohe Genauigkeit der gravimetrischen Methoden notwendig. PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> Messungen, bei denen nur Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser von kleiner oder gleich 10 $\mu$ m bzw. 2,5 $\mu$ m abgeschieden werden, liefern ohne hohe Präzision kein brauchbares Ergebnis.

Bei der Bestimmung der Aerosolmassenkonzentration ist die relative Feuchte ein Faktor, der sowohl während des Beladens als auch während der gravimetrischen Bestimmungen die Genauigkeit stark beeinflusst. Hygroskopische Aerosole können bei hohen relativen Feuchten eine beträchtliche Menge Wasser aufnehmen und somit

deutlich an Masse zunehmen. Um korrekte Ergebnisse bei den gravimetrischen Messungen zu erhalten, müssen die relativen Feuchtwerte bei der ersten und zweiten Messung übereinstimmen, da sonst Massenzunahmen gemessen werden, die nicht auf die abgeschiedene Aerosolmasse zurückgeführt werden können.

Neben der relativen Feuchte gibt es auch andere Parameter, wie zum Beispiel Temperatur und Luftdruck, die während der gravimetrischen Messungen möglichst konstant gehalten werden müssen. Ladungseffekte, die durch das Hantieren mit dem Filter verursacht werden, sollten auch möglichst vermieden werden. Zu diesem Zweck können  $\alpha$ -Strahler in der Wägekammer angebracht werden, die ein Ladungsgleichgewicht in der Kammer erzeugen und somit eine Neutralisation von geladenen Gegenständen (Filter, Waagenteile) ermöglichen. Weiters werden bezüglich Temperatur und relativer Feuchte Standardbedingungen definiert. Für den europäischen Raum ist dies in Form der EN12341:1999 Messvorschrift [5] für  $PM_{10}$ -Messungen und in Form der EN14907:2005 Messvorschrift [6] für  $PM_{2,5}$ -Messungen, die vom CEN (Comité Européen de Normalisation) festgelegt wurden, geschehen. Der vorgeschriebene Wert für die Temperatur während der gravimetrischen Bestimmungen liegt bei  $20^{\circ}C \pm 1^{\circ}C$  und für die relative Feuchte sind  $50\% \pm 5\%$  vorgegeben.

Eine Veränderung dieser Messvorschriften, die schon häufig diskutiert wurde, ist eine Reduktion des vorgeschriebenen relativen Feuchtwerts von 50% auf um die 30%. Je höher die relative Feuchte bei der gravimetrischen Vermessung des Filters ist, umso mehr Wasser lagert sich am Filter und am Aerosol an. Für eine möglichst genaue Massenbestimmung des atmosphärischen Aerosols, ist jedoch ein möglichst niedriger Wassergehalt wünschenswert und somit ein niedriger relativer Feuchtwert von Vorteil. Eine Absenkung des vorgeschriebenen relativen Feuchtwerts erscheint daher sinnvoll, jedoch müssten zuerst die Auswirkungen auf Aerosol und auf Filtermaterial untersucht werden.

Für die Wasseraufnahme von Aerosol ist dies bereits geschehen und es existieren sowohl experimentelle als auch theoretische Ergebnisse zu diesem Thema ([7], [8], [9], etc.). Was die Wasseraufnahme von Filtern in Abhängigkeit von der relativen Feuchte betrifft, existieren bei weitem weniger Untersuchungen als über atmosphärische Aerosole bzw. atmosphärische Aerosolkomponenten. Demuyneck [10] untersuchte experimentell Glasfaser- und Cellulosefilter und Hänninen et al. [11] analysierten verschiedenste Fehlerquellen bei der gravimetrischen Vermessung von Teflonfiltern. Eine systematische Untersuchung verschiedener Filtermaterialien unter wohldefinierten Bedingungen fehlt allerdings.

Ein Effekt der gegen die Herabsetzung des vorgeschriebenen relativen Feuchtwerts spricht, ist dass bei stark hygroskopischen Materialien eine irreversible Massenzunahme erfolgen könnte, da solche Materialien das aufgenommene Wasser nur schwer wieder abgeben.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es nun 8 verschiedene Filtertypen in der in Abschnitt 3.3 beschriebenen Feuchtechamber nach dem in Abschnitt 3.1 festgelegten Messprotokoll zu vermessen, um festzustellen, ob irreversible Massenzunahme ein ernst zunehmender Effekt ist, der bei der Herabsetzung des vorgeschriebenen relativen

Feuchtwerts auf 30% auftritt.

Die Vorgehensweise mit der die irreversible Massenzunahme untersucht wird, nimmt pro Filter ungefähr fünf Tage in Anspruch. In der bereits erwähnten Feuchtekammer werden in diesen fünf Tagen relative Feuchten von 30%-40%, ca. 50% und sowie ca. 90% erzeugt. In den ersten 3 Tagen wird die relative Feuchte von Tag zu Tag in den beschriebenen Schritten erhöht und am Tag 4 und Tag 5 wieder abgesenkt auf den ursprünglichen Wert von zuerst 50% und anschließend 30%-40%.

Während der gesamten Messdauer werden relative Feuchte, Temperatur und Masse des Filters mit Hilfe eines Computers aufgezeichnet. Aus diesen Werten wird im Anschluss, sofern vorhanden, die irreversible Massenzunahme berechnet.

## Kapitel 2

# Theoretischer Hintergrund

Im folgenden Kapitel sind einige theoretische Grundlagen zusammengefasst, die für das Verständnis und die Interpretation der durchgeführten Messungen benötigt werden. Begriffe wie Sättigungsdampfdruck, Sättigungsverhältnis, relative Feuchte, etc. werden definiert und die Eigenschaften von Lösungen werden aus theoretischer Sicht näher beschrieben. Abschnitt 2.3 enthält die Beschreibung der Eigenschaften der für die Experimente verwendeten Filtermaterialien und erklärt die physikalischen Prinzipien verschiedener Abscheidemechanismen an Filtern. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels beschäftigt sich mit derzeit gängigen Messprotokollen sowie Störfaktoren, die präzise gravimetrische Bestimmungen verfälschen können.

Für die Zusammenstellung des folgenden Kapitels wurden folgende Quellen herangezogen: W. Hinds [12], C.E. Mortimer und U. Müller [13], K. Willeke und P.A. Baron [14], K.R. Spurny(1970) [15], K.R. Spurny(1998) [16], C.N. Davies [17], S.K. Friedlander [18], G.L. Natanson [19], K.W. Lee und B.Y.H. Liu [20], I.B. Stechkina, A.A. Kirsch, N.A. Fuchs [21], R.C. Brown [22], K.L. Rubow [23], O. Hänninen et al. [11], M. Demuyneck [10], K. Koistinen et al. [2], Comité Européen de Normalisation [5] [6], M. Jantunen et al. [4], wikipedia [30], Umweltbundesamt [31]

### 2.1 Wichtige Größen und ihre Definition

Quellen: W. Hinds [12], C.E. Mortimer und U. Müller [13], wikipedia [30]

Der Partialdruck beschreibt den Druck einer Gaskomponente einer Gasmischung, wenn diese Komponente das gesamte zur Verfügung stehende Volumen ausfüllen würde. Er ist somit eine Größe, die einer spezifischen Komponente eines Gasgemisches zugeordnet werden kann. Nach dem Gesetz von Dalton (Gleichung 2.1.1) setzt sich der Druck einer Gasmischung aus der Summe der einzelnen Partialdrücke zusammen.

$$p = \sum_i p_i \quad (2.1.1)$$

$p$ ...Gesamtdruck  
 $p_i$ ...Partialdrücke der einzelnen Gaskomponenten

Der Partialdruck einer Gaskomponente lässt sich mit Hilfe des Stoffmengenanteils (Gleichung 2.1.2), auch Molenbruch genannt, berechnen. (Gleichung 2.1.3)

$$x_i = \frac{n_i}{\sum_l n_l} \quad (2.1.2)$$

$x_i$ ...Molenbruch/Stoffmengenanteil der  $i$ -ten Gaskomponente  
 $n_i$ ...Molanzahl der  $i$ -ten Gaskomponente  
 $n_l$ ...Molanzahl der vorhandenen Gaskomponenten

$$p_i = \frac{n_i}{\sum_l n_l} * p = x_i * p \quad (2.1.3)$$

$p_i$ ...Partialdruck der  $i$ -ten Gaskomponente  
 $n_i$ ...Molanzahl der  $i$ -ten Gaskomponente  
 $n_l$ ...Molanzahl der vorhandenen Gaskomponenten  
 $p$ ...Gesamtdruck  
 $x_i$ ...Molenbruch/Stoffmengenanteil der  $i$ -ten Gaskomponente

Zur Definition weiterer Begriffe gehen wir der Einfachheit halber von einem System, das aus einer Substanz besteht, aus. Bei der Betrachtung eines abgeschlossenen Gefäßes in dem sich nur eine Substanz befindet, kann man beobachten, dass ein Teil der Substanz im flüssigen und ein Teil der Substanz im gasförmigen Zustand vorliegt.

Sofern man das System im abgeschlossenen Zustand belässt, wird sich weder der Anteil der flüssigen Phase noch der Anteil der gasförmigen Phase verringern oder vergrößern. Das liegt daran, dass sich das System in einem Fließgleichgewicht befindet, bei dem genauso viele Teilchen aus dem flüssigen Zustand in den gasförmigen verdampfen, wie umgekehrt gasförmige Teilchen an der Flüssigkeit kondensieren.

Diesem Zustand kann man einen bestimmten Druck zuordnen, der dem Partialdampfdruck der Substanz entspricht. Da sich das System in diesem Zustand im Gleichgewicht befindet, nennt man diesen Partialdampfdruck Gleichgewichts- bzw. Sättigungsdampfdruck.

Wenn nun dem beschriebenen System Wärme zugeführt wird, verändert sich das Verhältnis des gasförmigen Anteils zum flüssigen Anteil entsprechend der Temperatur. Grund dafür ist, dass bei steigender Temperatur der Sättigungsdampfdruck der

Substanz steigt und mehr Moleküle aus dem flüssigen Zustand in den gasförmigen Zustand übergehen.

Der Sättigungsdampfdruck ist außerdem auch ein Maß für die Stärke, der Anziehungskräfte zwischen den einzelnen Molekülen. Je stärker die intermolekularen Anziehungskräfte in der Flüssigkeit sind, umso geringer ist der Sättigungsdampfdruck.

Hinds [12] beschreibt eine Gleichung (Gleichung 2.1.4), die empirisch für Wasser den Zusammenhang zwischen Sättigungsdampfdruck und Temperatur wiedergibt. Zu beachten ist hierbei, dass die Formel nur für einen Temperaturbereich von 0°C bis 100°C gilt.

$$p_s = \exp\left(16,7 - \frac{4060}{T - 37}\right) \quad (2.1.4)$$

$p_s$ ...Sättigungsdampfdruck [kPa]  
 $T$ ...Temperatur [K]

Die Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks erklärt auch warum wärmere Luft mehr Wasser aufnehmen kann als kalte Luft (Abbildung 2.1).

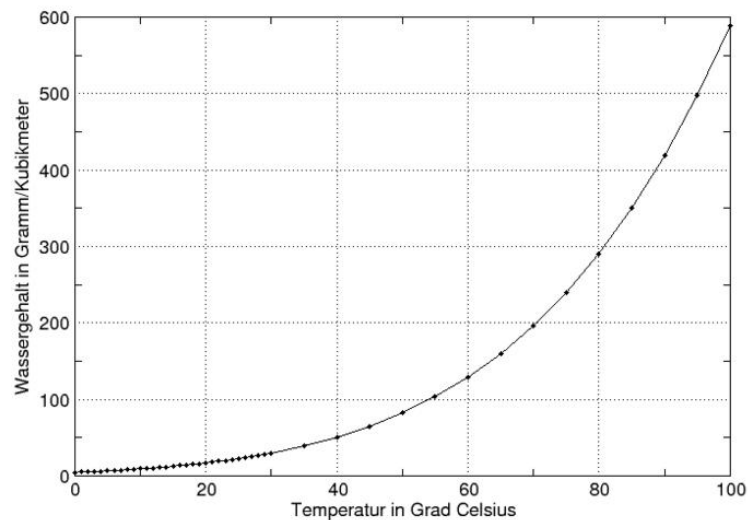


Abbildung 2.1: Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmenge von Wasserdampf in Luft [30]

Über den Sättigungsdampfdruck kann man in weiterer Folge das Sättigungsverhältnis (Gleichung 2.1.5) definieren. Das Sättigungsverhältnis erhält man durch Bildung des Quotienten vom momentanen Dampfdruck und Sättigungsdampfdruck bei gegebener Temperatur.

$$S_R = \frac{p}{p_s(T)} \quad (2.1.5)$$

$S_R$ ...Sättigungsverhältnis  
 $p$ ...momentaner Dampfdruck  
 $p_s(T)$ ...Sättigungsdampfdruck bei Temperatur  $T$

Bei einem Sättigungsverhältnis von 1 entspricht der momentane Dampfdruck des Systems dem Sättigungsdampfdruck und das System liegt im gesättigten Zustand bzw. im Gleichgewicht vor. Bei einem Wert von kleiner 1 spricht man von Untersättigung und bei einem Wert größer 1 von Übersättigung.

Im abgeschlossenen System im Gleichgewicht, kommt es nicht zu Über- oder Untersättigung, da das System von sich aus nicht vom Gleichgewichtszustand abweicht. In der Atmosphäre liegt meistens ein untersättigter Zustand vor, jedoch spielt die Übersättigung bei der Wolkenbildung eine Rolle.

Zwei wichtige Größen zur Beschreibung des Wassergehalts der Atmosphäre oder eines betrachteten Systems sind die absolute und die relative Feuchte. Die relative Feuchte ist ein prozentuelles Maß und kann berechnet werden in dem man das Sättigungsverhältnis mit 100 multipliziert.

Die absolute Feuchte hingegen entspricht dem in einem  $m^3$  Luft enthaltenem Wasserdampf in Gramm. Die relative Feuchte ist somit durch ihre Abhängigkeit vom Sättigungsdampfdruck eine temperaturabhängige Größe, während die absolute Feuchte ein temperaturunabhängiger Wert ist.

Durch die Verwendung von Salzlösungen können verschiedene relative Feuchten über einer Flüssigkeitsoberfläche erzeugt werden. Die physikalischen Prozesse, die dafür verantwortlich sind, werden im folgenden Kapitel erklärt.

## 2.2 Lösungen - Physikalische Beschreibung und thermodynamisches Verhalten

Quellen: W. Hinds [12], C.E. Mortimer und U. Müller [13], wikipedia [30]

Eine Lösung ist eine homogene Mischung aus einem oder mehreren chemischen Stoffen in einem Lösungsmittel. Das Lösungsmittel liegt hierbei immer in flüssiger Form vor, während die gelösten Stoffe auch fest oder gasförmig sein können. Als Lösungsmittel wird meist der Stoff mit dem größten Mengenanteil bezeichnet.

Im Gegensatz zu Gasen sind Flüssigkeiten nicht beliebig miteinander mischbar und jedes Lösungsmittel hat eine maximale Menge eines Stoffes, die gelöst werden

kann. Diese maximale Menge eines Stoffes wird als Löslichkeit des Stoffes bezeichnet und ist im Allgemeinen von Temperatur und Druck abhängig.

Enthält eine Lösung die maximale aufnehmbare Stoffmenge, spricht man von einer gesättigten Lösung. Befinden sich geringere Konzentrationen des gelösten Stoffes in der Lösung spricht man von ungesättigten Lösungen und bei größeren Konzentrationen von Übersättigung. Bei übersättigten Lösungen bildet sich ein sogenannter Reststoff in der Lösung, der aus der Lösung ausfällt. Zwischen der Lösung und dem Reststoff stellt sich in weiterer Folge ein Fließgleichgewicht ein, wodurch sich eine konstante Konzentration in der Lösung einstellt.

Die Lösbarkeit eines bestimmten Stoffes ist von den chemischen Eigenschaften des Lösungsmittels abhängig. Im Allgemeinen kann man sagen, dass polare Stoffe gut in polaren Lösungsmitteln und schlecht bis gar nicht in unpolaren Lösungsmitteln lösbar sind und umgekehrt.

Der Spezialfall einer Lösung, der für meine Untersuchungen wichtig ist, sind in Wasser gelöste Salze. Hierbei löst Wasser als polares Lösungsmittel Salze, die als Ionenkristalle vorliegen, auf und es entstehen hydratisierte Ionen. Energetisch gesehen, besteht dieser Prozess aus 2 Schritten. Einerseits muss der vorliegende Ionenkristall aufgelöst werden, wozu die Gitterenergie des Kristalls aufgebracht werden muss und andererseits wird bei der Hydratation der Ionen Energie frei.

Der zweite Schritt besteht wiederum aus einzelnen Schritten (Lösung der Wasserstoffbrücken zwischen den einzelnen Wassermolekülen, Hydratation der Anionen, Hydratation der Kationen), jedoch kann man diese einzelnen Schritte nicht getrennt voneinander untersuchen. Aus diesem Grund wird immer nur der Gesamtenergieumsatz der drei Prozesse angegeben.

Falls beim ersten Schritt mehr Energie benötigt wird als beim zweiten frei wird, spricht man von einem endothermen Prozess, bei dem Energie benötigt wird (z.B. Auflösung von Ammoniumnitrat in Wasser). Wenn mehr Energie frei wird als benötigt wird um den Kristall aufzulösen, liegt ein exothermer Prozess vor, bei dem Energie frei wird (z.B. Auflösung von Natriumhydroxid in Wasser). Bei Salzlösungen, die durch exotherme Prozesse entstehen, erwärmt sich die Lösung während des Herstellungsprozesses und bei endothermen Prozessen kühlt die Lösung ab.

Wie vorher schon erwähnt, ist die Löslichkeit bzw. die Sättigungskonzentration einer Lösung von der Temperatur und dem Druck abhängig, wobei sich diese Abhängigkeit mit Henri Le Chateliers Prinzip des kleinsten Zwanges erklären lässt. Das Prinzip des kleinsten Zwanges besagt, dass ein System im Gleichgewicht einem äußeren Zwang (Druckveränderung, Temperaturveränderung, etc.) ausweicht und ein neuer Gleichgewichtszustand sich einstellt.

Je nachdem, ob die Herstellung einer Lösung nun durch einen endothermen oder exothermen Prozess erfolgt, reagiert die entstandene Lösung unterschiedlich auf eine Temperaturerhöhung. Wenn bei einem endothermen Lösungsvorgang die Temperatur erhöht wird, steht zusätzliche Energie zur Verfügung, wodurch mehr Ionen in Lösung gehen können. Somit nimmt die Löslichkeit mit steigender Temperatur zu. Bei einem exothermen Lösungsvorgang ist die Löslichkeit umgekehrt proportional



zur Temperatur, da beim Prozess selbst schon Wärme entsteht und der Prozessablauf durch die Zufuhr zusätzlicher Wärme behindert wird.

Bei Salzlösungen sind im Gegensatz zu Gasen Druckveränderungen vernachlässigbar, da Flüssigkeiten inkompressibel sind.

Einige Eigenschaften, sogenannte konstitutive Eigenschaften, einer Lösung sind von den chemischen Eigenschaften der gelösten Stoffe abhängig. Zu diesen Eigenschaften zählen zum Beispiel die Viskosität und Brechzahl. Andere Eigenschaften hingegen, die so genannten kolligativen Eigenschaften, hängen nur von der Änderung der Anzahl der gelösten Teilchen und nicht von deren chemischen Eigenschaften ab. Hierzu zählt man Dampfdruckerniedrigung, Siedepunkterhöhung, Schmelzpunkterniedrigung, osmotischer Druck, etc.

Da für die weiteren Experimente von den aufgezählten Effekten nur die Dampfdruckerniedrigung bei Salzlösungen relevant ist, wird hier nur auf dieses Phänomen näher eingegangen.

Ein wichtiger Zusammenhang in diesem Bezug ist, das Raoult'sche Gesetz welches besagt, dass sich der Gesamtdampfdruck einer Lösung aus den Partialdrücken der einzelnen Komponenten zusammensetzt und hier in Gleichung 2.2.1 für ein System mit zwei Stoffen angegeben ist. Die Partialdampfdrücke der einzelnen Komponenten können wiederum aus den Stoffmengenanteilen und den Dampfdrücken der Reinstoffe errechnet werden (Gleichung 2.2.2). Beide Gleichungen zusammen führen auf Gleichung 2.2.3, die dem Raoult'schen Gesetz für zwei verschiedene Stoffe entspricht. Das Raoult'sche Gesetz kann um beliebig viele Stoffe erweitert werden.

$$p = p(A) + p(B) \quad (2.2.1)$$

p...Gesamtdruck der Lösung

p(A)...Partialdampfdruck des Stoffes A

p(B)...Partialdampfdruck des Stoffes B

$$p(A) = x(A) * p^0(A) \quad (2.2.2)$$

p(A)...Partialdampfdruck des Stoffes A

x(A)...Stoffmengenanteil des Stoffes A

p<sup>0</sup>(A)...Partialdampfdruck des reinen Stoffes A

$$p = x(A) * p^0(A) + x(B) * p^0(B) \quad (2.2.3)$$

Das Raoult'sche Gesetz beschreibt das Verhalten von idealen Lösungen und findet daher nur bei stark verdünnten Lösungen Anwendung. Bei einer idealen Lösung ist der Unterschied der Bindungskräfte zwischen verschiedenen Molekülsorten vernachlässigbar. Es macht somit keinen Unterschied, ob ein Molekül der Sorte A mit einem Molekül der Sorte B oder der Sorte A wechselwirkt und die Tendenz zu verdampfen ist für das Molekül A somit unabhängig vom Nachbarmolekül. Bei realen Lösungen sind die Unterschiede der intermolekularen Wechselwirkungskräfte nicht mehr vernachlässigbar und das Verhalten der Dampfdrücke der Lösungen weicht entweder positiv oder negativ vom durch das Raoult'sche Gesetz prognostizierten Verhalten ab.

Eine negative Abweichung der Partialdampfdrücke vom Raoult'schen Gesetz tritt auf, wenn die Wechselwirkungskräfte zwischen Molekülen gleicher Sorte kleiner sind, als zwischen Molekülen unterschiedlicher Sorte (Abbildung 2.2).

Der umgekehrte Effekt tritt auf, wenn die Wechselwirkungskräfte zwischen Molekülen gleicher Sorte größer sind, als zwischen Molekülen unterschiedlicher Sorte (Abbildung 2.3).

Da die Dampfdruckerniedrigung, wie bereits erwähnt, zu den kolligativen Eigenschaften zählt, wird hier der Vollständigkeit halber der van't Hoff-Faktor erwähnt.

Der van't Hoff-Faktor eines gelösten Stoffes ist ein Maß für die Dissoziation des Stoffes. Bei der Dissoziation von Natriumchlorid zum Beispiel enthält die Lösung, nachdem alle Ionen dissoziiert sind, doppelt so viele Teilchen wie zuvor da aus jedem Natriumchloridmolekül ein Natrium- und ein Chloridion entstehen. Der theoretische van't Hoff-Faktor für diesen Prozess ist zwei, da sich die Anzahl der Teilchen verdoppelt. Die ursprüngliche Konzentration des Salzes muss für alle weiteren Überlegungen und Berechnungen mit dem van't Hoff-Faktor korrigiert werden.

Experimentelle Ergebnisse zeigen, dass bei stark konzentrierten Lösungen die experimentell bestimmten van't Hoff-Faktoren nicht mehr mit den theoretisch errechneten übereinstimmen. Dies liegt daran, dass sich bei hohen Konzentrationen die gelösten Ionen gegenseitig beeinflussen. Diese Beeinflussung ist für mehrfach geladene Ionen größer als für einfach geladene Ionen, wodurch die experimentellen Werte für Lösungen mit mehrfach geladenen Ionen stärker von der Theorie abweichen als für einfach geladene Ionen. Falls Stoffe nicht vollständig dissoziieren, können die experimentellen Werte auch kleiner ausfallen als es die Theorie vorhersagt. Weiters beeinflussen sich kleinere Ionen stärker gegenseitig als größere Ionen, was auch zu Abweichungen vom theoretisch errechneten van't Hoff-Faktor führen kann.

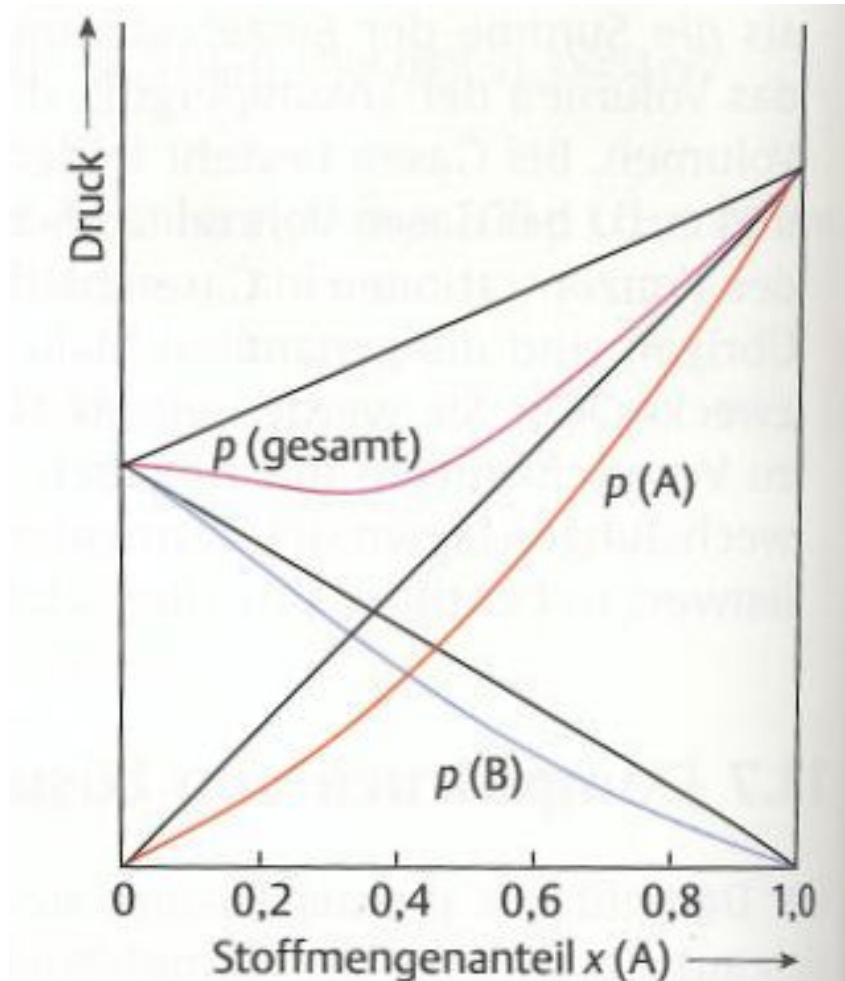


Abbildung 2.2: Eine negative Abweichung der Partialdampfdrücke vom Raoult'schen Gesetz tritt auf, wenn die Wechselwirkungskräfte zwischen Molekülen gleicher Sorte kleiner sind, als zwischen Molekülen unterschiedlicher Sorte.

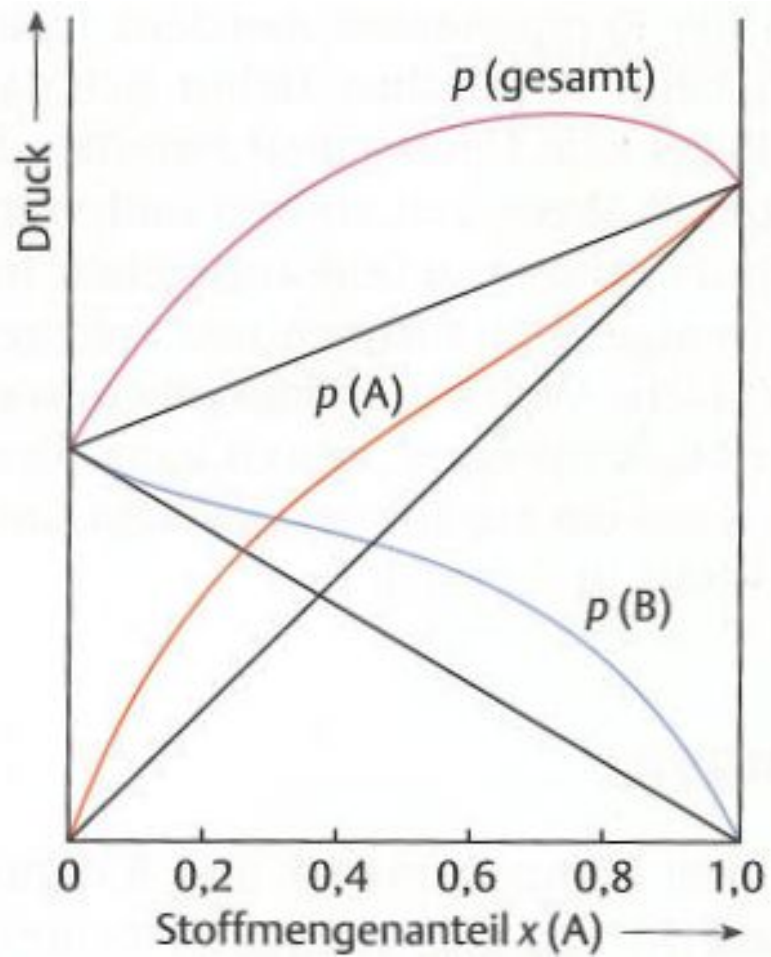


Abbildung 2.3: Eine positive Abweichung der Partialdampfdrücke vom Raoult'schen Gesetz tritt auf, wenn die Wechselwirkungskräfte zwischen Molekülen gleicher Sorte größer sind, als zwischen Molekülen unterschiedlicher Sorte.

## 2.3 Filtration

Quellen: W. Hinds [12], K. Willeke und P.A. Baron [14], K.R. Spurny(1970) [15], K.R. Spurny(1998) [16], C.N. Davies [17], S.K. Friedlander [18], G.L. Natanson [19], K.W. Lee und B.Y.H. Liu [20], I.B. Stechkina, A.A. Kirsch, N.A. Fuchs [21], R.C. Brown [22], K.L. Rubow [23], M. Jantunen et al. [4], M. Demuyneck [10]

Filtration ist wahrscheinlich eine der meist verwendeten Techniken zur Untersuchung von Aerosolen, da diese Methode sehr einfach, flexibel einsetzbar und günstig ist [14].

Bei den Experimenten der vorliegenden Arbeit werden Filtermaterialien zwar nicht zur Aerosolabscheidung bzw. Filtration verwendet, da dies aber normalerweise der Hauptanwendungsbereich von Filtern ist, werden hier die wichtigsten Begriffe und Definition bezüglich Filtration und Filtermaterialien erklärt und der Vorgang der Filtration physikalisch beschrieben. Zum Abschluss werden noch die Eigenschaften verschiedener Filterklassen näher erörtert.

### 2.3.1 Wichtige Definitionen und Größen

Unter Filtration versteht man den Prozess der Separation dispergierter Partikel von einem Trägermedium unter zu Hilfenahme eines Filtermaterials. Die dispergierten Partikel, das Trägergas und die Filtermaterialien sind somit drei Teile, die bei der Filtration involviert sind und jeder dieser Teile ist von verschiedenen Parametern abhängig [15].

Die wichtigsten Parameter mit denen die dispergierten Teilchen charakterisiert werden, sind die Anzahlgrößenverteilung, Massengrößenverteilung, Anzahl- und Massenkonzentration sowie Masse, Dichte, Form, elektrische Ladung und chemische Zusammensetzung der einzelnen Partikel.

Das Trägergas, das bei der Filtration das Filtermedium durchströmt, wird mit Hilfe von Druck, Temperatur, Feuchte, Dichte und der mittleren Geschwindigkeit der Trägergasmoleküle sowie der makroskopischen Strömungsgeschwindigkeit beschrieben.

Parameter zur Beschreibung des Filtermaterials sind die geometrische Form des Filters, Faserdicke, Porosität und Packungsdichte.

Weitere Größen, die die Eigenschaften des Filtermaterials beschreiben und teils mit Hilfe der eben genannten Größen definiert werden können, sind Abscheideeffizienz, Druckabfall und Filterqualität.

Wie man sieht, ist Filtration ein Prozess, der von sehr vielen verschiedenen Parametern abhängt, was eine allgemeine mathematische Beschreibung erschwert. Wenn allerdings einzelne Parameter konstant gehalten werden, können mathematische Modelle zur Beschreibung der Filtration entwickelt werden.

Eine sehr geläufige Näherung zur Beschreibung der Filtration ist die Betrachtung eines monodispersen Aerosols, das aus sphärischen Partikeln besteht. Weiters können beim Trägermedium Parameter wie Temperatur, Feuchte etc. konstant gehalten wer-

den. Sämtliche später erwähnten Modelle beziehen sich auf solche vereinfachten Situation, zuvor jedoch noch einige Begriffe und Definitionen zu Filtermaterialien.

Ein wichtiger Begriff, der die Effizienz mit der ein Filter Partikel aus der Luft abscheidet beschreibt, ist die Abscheideeffizienz, die mathematisch mit Gleichung 2.3.1 berechnet werden kann. Die Abscheideeffizienz bezieht sich auf die Teilchenanzahl, während sich die Massenabscheideeffizienz (Gleichung 2.3.2) auf die Masse des gesammelten Aerosols bezieht.

$$E = \frac{N_{in} - N_{out}}{N_{in}} \quad (2.3.1)$$

$E$ ...Abscheideeffizienz bezogen auf Teilchenanzahl  
 $N_{in}$ ...Anzahl der Teilchen, die in den Filter eindringen  
 $N_{out}$ ...Anzahl der Teilchen, die den Filter verlassen

$$E_m = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \quad (2.3.2)$$

$E_m$ ...Abscheideeffizienz bezogen auf Teilchenmasse  
 $C_{in}$ ...Massenkonzentration der Teilchen, die in den Filter eindringen  
 $C_{out}$ ...Massenkonzentration der Teilchen, die den Filter verlassen

Eine weitere wichtige Größe, die oft Verwendung findet bei Angaben zu Gerätschaften, die zur Luftreinigung verwendet werden, ist die Penetration. Auch sie kann sich auf die Teilchenanzahl oder die Teilchenmasse beziehen und hängt mit der Abscheideeffizienz über Gleichung 2.3.3 und 2.3.4 zusammenhängt.

$$P = \frac{N_{out}}{N_{in}} = 1 - E \quad (2.3.3)$$

$P$ ...Penetration bezogen auf Teilchenanzahl  
 $N_{in}$ ...Anzahl der Teilchen, die in den Filter eindringen  
 $N_{out}$ ...Anzahl der Teilchen, die den Filter verlassen  
 $E$ ...Abscheideeffizienz bezogen auf Teilchenanzahl

$$P_m = \frac{C_{out}}{C_{in}} = 1 - E_m \quad (2.3.4)$$

$P_m$ ...Penetration bezogen auf Teilchenmasse  
 $C_{in}$ ...Massenkonzentration der Teilchen, die in den Filter eindringen

$C_{out}$ ...Massenkonzentration der Teilchen, die den Filter verlassen  
 $E_m$ ...Abscheideeffizienz bezogen auf Teilchenmasse

Zwei Größen, die zwar eigentlich die Strömung des Trägermediums beschreiben, aber für die weitere Charakterisierung von Filtermaterialien benötigt werden, sind die Anströmgeschwindigkeit und die Durchflussgeschwindigkeit im Filter. Sofern die Flussrate durch den Filter, die Filterfläche und die Packungsdichte  $\alpha$  (Gleichung 2.3.7) gegeben sind, können mit Hilfe von Gleichung 2.3.5 und Gleichung 2.3.6 die Anström- und die Durchflussgeschwindigkeit durch den Filter berechnet werden. Die Anströmgeschwindigkeit ( $U_0$ ) beschreibt die Geschwindigkeit des Luftstroms vor und beim Eintritt in den Filter während die Durchflussgeschwindigkeit ( $U$ ) die Strömungsgeschwindigkeit der Luft im Filter selbst angibt. Normalerweise ist  $U$  ein wenig größer als  $U_0$ , da der Luftstrom aufgrund der Fasern weniger Volumen zur Verfügung hat.

$$U_0 = \frac{Q}{A} \quad (2.3.5)$$

$U_0$ ...Anströmgeschwindigkeit  
 $Q$ ...Flussrate durch Filter  
 $A$ ...Filterfläche

$$U = \frac{Q}{A(1 - \alpha)} \quad (2.3.6)$$

$U$ ...Durchflussgeschwindigkeit  
 $Q$ ...Flussrate durch Filter  
 $A$ ...Filterfläche  
 $\alpha$ ...Packungsdichte

$$\alpha = \frac{V_f}{V_g} = 1 - p \quad (2.3.7)$$

$\alpha$ ...Packungsdichte  
 $V_f$ ...Volumen der Filterfasern  
 $V_g$ ...Gesamtvolumen des Filters  
 $p$ ...Porosität des Filters

Bei Filtern kann man beobachten, dass auch Teilchen, die kleiner als die Porengröße sind, am Filter abgeschieden werden können. Dieses Phänomen lässt sich durch die verschiedenen physikalischen Abscheidemechanismen (siehe Abschnitt 2.3.2), die bei der Filtration auftreten, erklären.

Zum Verständnis der folgenden Definitionen und Beschreibungen, ist folgende Modellvorstellung eines Filters gut geeignet: "Ein Filter besteht aus vielen dünnen Filterschichten, wobei jede Schicht eine gewisse Abscheidewahrscheinlichkeit für gewisse Partikelgrößen hat." [12]

Wenn nun ein monodisperses Aerosol einen Filter durchquert, steigt die Anzahl der abgeschiedenen Partikel proportional zur Filterdicke (Gleichung 2.3.8). Unter Verwendung von Gleichung 2.3.8 und unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Teilchenkonzentrationsabnahme des Aerosolstroms proportional ist zur Anzahl der abgeschiedenen Teilchen pro Einheitsvolumen des Aerosolstroms, der die Filterschicht durchströmt, kann man Gleichung 2.3.9 formulieren.

Um nun den Effekt des gesamten Filters zu berechnen, muss Gleichung 2.3.9 über die gesamte Dicke integriert werden und nach einigen Umformungen erhält man Gleichung 2.3.10, die die Abhängigkeit der Penetration von der Filterdicke und  $\gamma$  wiedergibt.  $\gamma$  ist eine Größe, die die Abscheideeffizienz einer dünnen Filterschicht  $dt$  pro Dicke angibt und wird noch im nächsten Abschnitt näher beschrieben.

$$n_c = N * \gamma * dt \quad (2.3.8)$$

$n_c$ ...Anzahl der an der Filterschicht abgeschiedenen Partikel pro Einheitsvolumen, das Filter passiert

$N$ ...Partikelanzahlkonzentration, die in dünne Filterschicht eintritt

$\gamma$ ...Abscheideeffizienz einer Filterschicht mit Dicke  $dt$

$dt$ ...Dicke einer sehr dünnen Schicht des Filters

$$dN = -n_c = -N * \gamma * dt \quad (2.3.9)$$

$dN$ ...Abnahme der Aerosolkonzentration, die dünne Filterschicht passiert

$n_c$ ...Anzahl der an der Filterschicht abgeschiedenen Partikeln pro Einheitsvolumen, das Filter passiert

$N$ ...Partikelanzahlkonzentration, die in dünne Filterschicht eintritt

$\gamma$ ...Abscheideeffizienz einer Filterschicht mit Dicke  $dt$

$dt$ ...Dicke einer sehr dünnen Schicht des Filters

$$P = \exp(-t\gamma) \quad (2.3.10)$$



P...Penetration

t...Filterdicke

$\gamma$ ...Abscheideeffizienz einer Filterschicht mit Dicke dt

Gleichung 2.3.10 wird wiederum benötigt, um die Filterqualität  $q_F$  zu definieren, die es ermöglicht verschiedene Filtermaterialien bzw. Filter verschiedener Dicke miteinander zu vergleichen.

Zur vollständigen Definition des Begriffs Filterqualität ist die Definition des Begriffs Druckabfall notwendig. Nachdem die Durchflussgeschwindigkeiten durch Filter meist klein genug sind, um laminare Luftströme innerhalb des Filters zu gewährleisten, kann man schon aus der Tatsache, dass  $U$  größer als  $U_0$  ist, schließen, dass innerhalb des Filters der Druck abfallen muss.

Eine genaue Beschreibung dieses Druckabfalls ist relativ kompliziert und hängt von verschiedensten Filtereigenschaften sowie der Anströmgeschwindigkeit ab. Davies [17] gibt eine Formel an, die den Druckabfall für Faserfilter beschreibt. Er geht dabei davon aus, dass der Druckabfall aus der Summe der Druckabfälle, die durch die Strömungswiderstände der einzelnen Fasern im Filter erzeugt werden, resultiert. Da diese Formel aber auch empirisch ermittelte Größen enthält und nur unter eingeschränkten Bedingungen gültig ist, wird hier auf die Formel verzichtet und lediglich eine qualitative Beschreibung vorgenommen.

Der Druckabfall an einem Filter ist direkt proportional zur Packungsdichte, der Anströmgeschwindigkeit sowie der Filterdicke und umgekehrt proportional zur Faserdicke bzw. Porengröße.

Auch die Abscheideeffizienz an Filtern ist von den eben aufgezählten Größen abhängig und ein Filter mit hoher Qualität sollte eine möglichst hohe Abscheideeffizienz und einen möglichst geringen Druckabfall aufweisen [12]. Das führt uns wieder zurück zur Definition der Filterqualität  $q_F$ .

Die Filterqualität erhält man durch Bildung des Quotienten von  $\gamma$ , das die Abscheideeffizienz widerspiegelt, zum Druckabfall pro Dicke (Gleichung 2.3.11). Unter zu Hilfenahme von Gleichung 2.3.10 kann man die Filterqualität auch auf den rechten Ausdruck der Gleichung 2.3.11 umformen.

$$q_F = \frac{\gamma * t}{\Delta p} = \frac{\ln(\frac{1}{P})}{\Delta p} \quad (2.3.11)$$

$q_F$ ...Filterqualität

$\gamma$ ...Abscheideeffizienz einer Filterschicht mit Dicke dt

$\Delta p$ ...Druckabfall

P...Penetration

### 2.3.2 Physikalische Beschreibung der Abscheidemechanismen an Filtermaterialien

Wie schon erwähnt, treten bei der Filtration verschiedene Abscheidemechanismen auf. Schon 1920 fand man heraus, dass Filtermaterialien für einen gewissen Partikelgrößenbereich schlechte Abscheideeffizienz haben. Der Partikelradius für diesen Bereich der niedrigen Abscheideeffizienz liegt laut K.R. Spurny [16] bei  $0,1\mu\text{m}$ - $0,2\mu\text{m}$ . Sowohl größere als auch kleinere Partikel werden besser abgeschieden, was auf den ersten Blick ein wenig erstaunlich scheint, bei näherer Betrachtung der unterschiedlichen Abscheidemechanismen jedoch verständlich wird.

Um nun die Abscheidemechanismen an einem Filter besser zu verstehen, betrachtet man zuerst eine einzelne Faser im Luftstrom aus Aerosolpartikel und Trägergas und beschreibt deren Abscheideeffizienz. In Aerosol Measurement von Willeke und Baron [14] wird die Faserabscheideeffizienz einer Faser, sowie die daraus resultierende Abscheideeffizienz des Filters mit Hilfe der Modellvorstellung, die in Abbildung 2.4 skizziert ist, definiert.

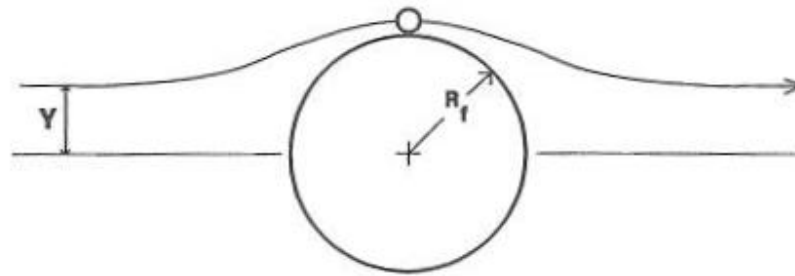


Abbildung 2.4: Skizze zur Definition der Abscheideeffizienz an einer Faser [14]

Man geht dabei davon aus, dass eine Faser mit Durchmesser  $R_f$  alle Partikel in der Luftschicht der Dicke  $Y$  entfernt und erhält somit die Faserabscheideeffizienz über Gleichung 2.3.12 und die Abscheideeffizienz des Filters über Gleichung 2.3.13.

$$\eta_{total} = \frac{Y}{R_f} \quad (2.3.12)$$

$\eta_{total}$ ...Gesamtabscheideeffizienz einer einzelnen Faser

$R_f$ ...Radius der Faser

$Y$ ...Bereich der Trägergasschicht aus der Aerosol abgeschieden wird

$$E = 1 - \exp\left(\frac{-4L\eta_{total}\alpha}{d_f\pi(1-\alpha)}\right) \quad (2.3.13)$$

E...Gesamtabscheideeffizienz des Filters

L...Filterdicke

$\eta_{total}$ ...Gesamtabscheideeffizienz einer einzelnen Faser

$\alpha$ ...Packungsdichte

$d_f$ ...Faserdurchmesser

Die verschiedenen Mechanismen, die für die Abscheidung innerhalb des Bereichs Y verantwortlich sind, sind Brownsche Diffusion, Interzeption, Impaktion, Abscheidung aufgrund von Gravitation sowie elektrostatische Abscheidung. Die ersten vier Abscheidemechanismen werden unter dem Begriff mechanische Abscheidemechanismen zusammengefasst.

Die gesamte Faserabscheideeffizienz setzt sich aus der Summe der Abscheideeffizienzen der einzelnen Mechanismen zusammen. Die mathematische Formulierung dieser Effizienzen erfolgt in den nächsten Unterkapiteln.

Sobald ein Partikel an der Faser abgeschieden wurde, wird es dort durch van der Waals Kräfte festgehalten. Bei sehr hohen Strömungsgeschwindigkeiten können bereits abgeschiedene Partikel von den Fasern wieder abgelöst werden, was die Abscheideeffizienz beeinträchtigt.

### Brownsche Diffusion

Aerosolpartikeln folgen nicht nur den Stromlinien der Strömung des Tragergases sondern diffundieren aufgrund der Brownschen Bewegung von den Stromlinien weg (Abbildung 2.5).

Durch dieses Phänomens können auch Aerosolpartikel an einer Faser abgeschieden werden, die dies aufgrund von Impaktion oder Interzeption nicht könnten. Die Abscheidewahrscheinlichkeit für Partikel durch Diffusion steigt mit sinkendem Partikeldurchmesser und sinkender Strömungsgeschwindigkeit.

Mit der Quantifizierung der Beschreibung der Abscheidung durch Diffusion haben sich unter anderem S.K. Friedlander [18], G.L. Natanson [19] und K.W. Lee und B.Y.H. Liu [20] beschäftigt. Wobei von den hier genannten Modellen nur das von K.W. Lee und B.Y.H. Liu, den Einfluss der benachbarten Fasern auf die Abscheideeffizienz einer Faser berücksichtigt. Für die Abscheideeffizienz durch Brownsche Diffusion erhält man somit Gleichung 2.3.14, wobei hier die dimensionslose Peclet Zahl (Gleichung 2.3.15) und der hydrodynamische Faktor nach Kuwabara (Gleichung 2.3.16) eingehen.

$$\eta_{diff} = 2,58 \frac{1-\alpha}{K} Pe^{-\frac{2}{3}} \quad (2.3.14)$$

$\eta_{diff}$ ...Abscheideeffizienz der Brownschen Diffusion  
 K...hydrodynamischer Kuwabara Faktor  
 $\alpha$ ...Packungsdichte  
 Pe...Peclet Zahl

$$Pe = \frac{d_c U_0}{D} = \frac{3\pi_p d_c U_0}{kTC_c} \quad (2.3.15)$$

$d_c$ ...charakteristische Länge des Filtermaterials  
 $U_0$ ...Anströmgeschwindigkeit  
 $D$ ...Diffusionskoeffizient  
 $\eta$ ...Viskosität der Luft  
 $d_p$ ...Partikeldurchmesser  
 $k$ ...Boltzmannkonstante  
 $T$ ...Temperatur  
 $C_c$ ...Slipkorrekturfaktor nach Cunningham

$$K = -\frac{\ln \alpha}{2} - \frac{3}{4} + \alpha - \frac{\alpha^2}{4} \quad (2.3.16)$$

K...hydrodynamischer Kuwabara Faktor  
 $\alpha$ ...Packungsdichte

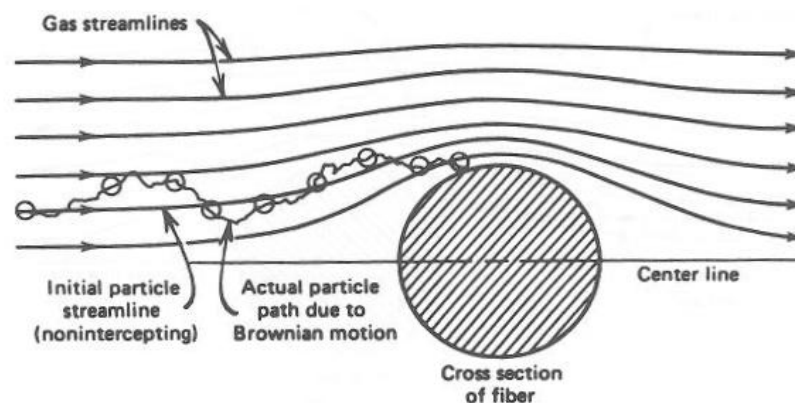


Abbildung 2.5: Abscheidung durch Brownsche Diffusion an einer einzelnen Faser [12]

## Interzeption

Interzeption ist der einzige Abscheideprozess bei dem das Aerosolpartikel die Stromlinie nicht verlässt. Abscheidung durch Interzeption tritt dann auf, wenn ein Partikel sich auf einer Stromlinie befindet, die in weniger als einem Partikelradius Abstand an der Faser vorbei führt (Abbildung 2.6).

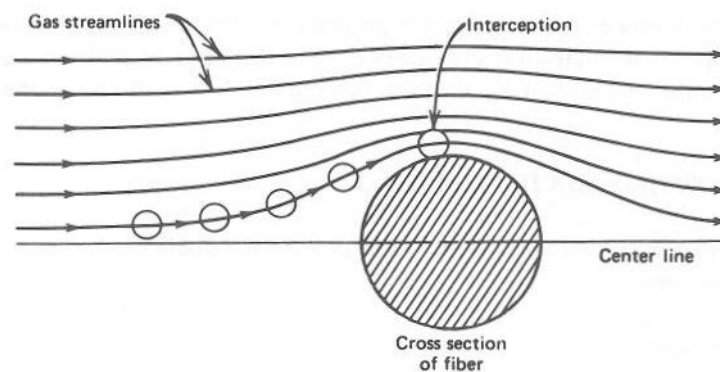


Abbildung 2.6: Abscheidung durch Interzeption an einer einzelnen Faser [12]

Bei der Beschreibung von Interzeption geht man davon aus, dass Impaktionseffekte und Diffusion vernachlässigt werden können. K. Willeke und P.A. Baron [14] geben Gleichung 2.3.17 für die Abscheideeffizienz einer einzelnen Faser an, die genau wie die Diffusionseffizienz vom Kuwabara Faktor und von einem dimensionslosen Parameter  $R$  (Gleichung 2.3.18) abhängt.

$$\eta_{inter} = \frac{(1 - \alpha)R^2}{K(1 + R)} \quad (2.3.17)$$

$\eta_{inter}$ ...Abscheideeffizienz der Interzeption

$\alpha$ ...Packungsdichte

$R$ ...dimensionsloser Parameter

$K$ ...hydrodynamischer Kuwabara Faktor

$$R = \frac{d_p}{d_f} \quad (2.3.18)$$

R...dimensionsloser Parameter

$d_p$ ...Partikeldurchmesser

$d_f$ ...Faserdurchmesser

## Impaktion

Bei der Abscheidung durch Impaktion spielt die Krümmung der Stromlinien im Bereich der Fasern eine Rolle. Wenn die Krümmung zu stark ist, können die Partikel aufgrund ihrer Trägheit den Stromlinien nicht genau folgen und kollidieren mit der Faser. (Abbildung 2.3.19)

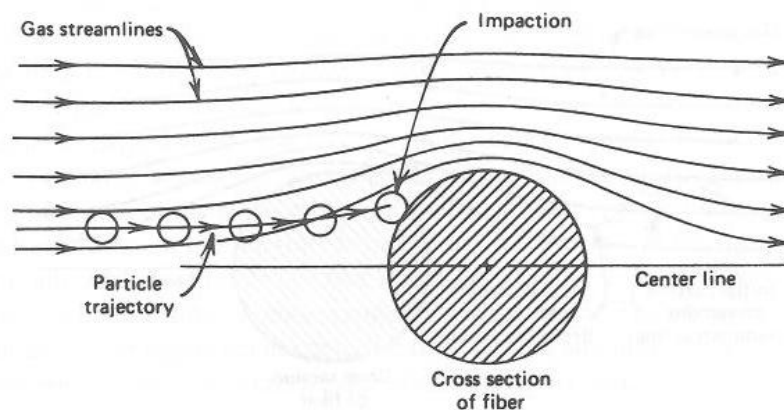


Abbildung 2.7: Abscheidung durch Impaktion an einer einzelnen Faser [12]

Je höher die Strömungsgeschwindigkeit ist, umso größer ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Partikel durch Impaktion abgeschieden wird. Weiters steigt die Impaktionswahrscheinlichkeit proportional zur Partikelgröße bzw. korrekter gesagt zur Partikelmasse.

Wie man sieht, sind die Impaktion und die Diffusion Effekte, die bei verschiedenen Partikelgrößen und verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten jeweils am stärksten zu tragen kommen (Abbildung 2.8).

Eine mathematische Beschreibung der Impaktionseffizienz (Gleichung 2.3.19) an einer Filterfaser findet man von I.B. Stechkina, A.A. Kirsch, N.A. Fuchs [21]. Ein wichtiger Parameter, der in die Beschreibung eingeht, ist die Stokeszahl, die als dimensionslose Größe ein Maß für die Abscheidewahrscheinlichkeit darstellt. Je größer die Stokeszahl ist, umso größer ist die Abscheidewahrscheinlichkeit durch Impaktion.

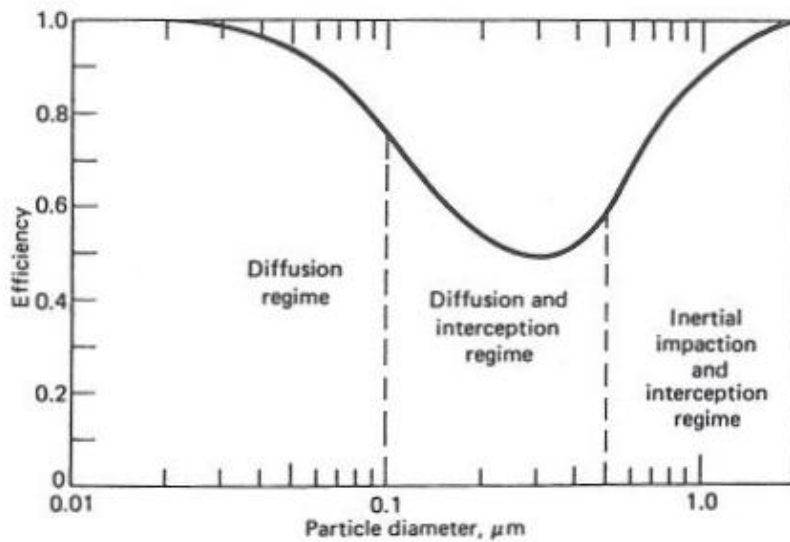


Abbildung 2.8: Effizienz in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers [14]

$$\eta_{imp} = \frac{Stk}{(2K)^2} ((29,6 - 28\alpha^{0,62})R^2 - 27,5R^{2,8}) \quad (2.3.19)$$

$\eta_{imp}$ ...Abscheideeffizienz der Impaktion  
 $Stk$ ...Stokeszahl  
 $\alpha$ ...Packungsdichte  
 $R$ ...dimensionsloser Parameter  
 $K$ ...hydrodynamischer Kuwabara Faktor

$$Stk = \frac{C_c d_p \rho_p U_0}{18 d_f \eta} \quad (2.3.20)$$

$C_c$ ...Slipkorrekturfaktor nach Cunningham  
 $d_p$ ...Partikeldurchmesser  
 $\rho_p$ ...Partikeldichte  
 $U_0$ ...Anströmgeschwindigkeit  
 $d_f$ ...Faserdurchmesser  
 $\eta$ ...Luftviskosität

## Abscheidung durch Gravitation

Die Abscheidung aufgrund von Gravitation hat von den vier mechanischen Abscheidemechanismen den geringsten Einfluss und ist in vielen Fällen vernachlässigbar. Im Allgemeinen kann man sagen, dass Gravitationsabscheidung nur dann eine Rolle spielt, wenn die Partikelgröße im  $\mu\text{m}$  Bereich liegt und die Strömungsgeschwindigkeiten kleiner als  $0,1\text{m/s}$  sind. Falls sich nun Partikelgröße und Strömungsgeschwindigkeit in besagten Bereichen befinden, kann es vorkommen, dass Partikel aufgrund der Gravitation ihre Stromlinien verlassen und abgeschieden werden.

Bei der mathematischen Beschreibung muss man unterscheiden wie die Richtung der Strömungsgeschwindigkeit im Vergleich zur Richtung der Gravitationskraft liegt. Falls beides in die gleiche Richtung zeigt, gilt Gleichung 2.3.21, bei entgegengesetzter Richtung hingegen Gleichung 2.3.22.

Der Faktor  $G$ , der in beiden Gleichungen vorkommt, ist der bestimmende dimensionslose Parameter der Gravitationsabscheidung (Gleichung 2.3.23).

$$\eta_{grav} \approx G(1 + R) \quad (2.3.21)$$

$$\eta_{grav} \approx -G(1 + R) \quad (2.3.22)$$

$\eta_{grav}$ ...Abscheideeffizienz der Gravitation  
G...dimensionsloser Parameter der Gravitationsabscheidung  
R...dimensionsloser Faktor

$$G = \frac{V_{TS}}{U_0} = \frac{\rho_g d_p^2 C_C g}{18U_0\eta} \quad (2.3.23)$$

G...dimensionsloser Parameter der Gravitationsabscheidung  
 $V_{TS}$ ...Absinkgeschwindigkeit des Partikels  
 $U_0$ ...Anströmgeschwindigkeit  
 $\rho_g$ ...Luftdichte  
 $d_p$ ...Faserdurchmesser  
 $C_C$ ...Slipkorrekturfaktor nach Cunningham  
 $g$ ...Gravitationsbeschleunigung  
 $\eta$ ...Luftviskosität



## Elektrostatische Abscheidung

Die elektrostatische Abscheidung ist ein schwer zu quantifizierender Prozess, da in den meisten Fällen die Größe der Ladung an den Partikeln nicht bekannt ist. Zur qualitativen Beschreibung kann man zwischen drei Prozessen, die zur Abscheidung durch elektrostatische Wechselwirkungen führen können, unterscheiden.

Gegengleich geladene Fasern und Partikel ziehen einander an, was dazu führt, dass das Partikel die Stromlinie verlässt und an der Faser abgeschieden wird.

Ein neutrales Partikel kann durch eine geladene Faser beeinflusst werden, indem im Partikel durch das elektrische Feld der Faser Ladungen verschoben werden bzw. Dipole induziert werden. Das Partikel wird dann mit der gegengleich geladenen Seite voran von der Faser angezogen und abgeschieden.

Beim dritten Prozess hat man ein geladenes Partikel und eine neutrale Faser und geht davon aus, dass das Partikel eine Bildladung in der Faser induziert. Die Bildladung und das geladene Teilchen ziehen einander an, was wiederum zur Abscheidung des Partikels führt.

Um diese Prozesse nun quantifizieren zu können, müsste man die Ladungsverteilungen auf mikroskopischer Ebene kennen. Brown [22] beschreibt eine empirisch gefundene Formel, die die elektrostatische Abscheideeffizienz von einem mit bekannter Ladung geladenen Teilchen und einer neutralen Glasfaser beschreibt. Da diese Formel aber nur eine sehr eingeschränkte Gültigkeit besitzt, wird sie hier nicht näher betrachtet.

Obwohl schwer quantifizierbar, ist der elektrostatische Abscheidemechanismus sehr wichtig bei Anwendungen, die hohe Abscheideeffizienz und niedrigen Druckabfall benötigten. Mit Hilfe der elektrostatischen Abscheidung kann die Abscheideeffizienz eines Filters stark erhöht werden.

Die Gesamteffizienz aller beschriebener Mechanismen ergibt sich, wie bereits erwähnt, aus der Superposition der einzelnen Mechanismen, solange die einzelnen Mechanismen einander nicht beeinflussen (Gleichung 2.3.24).

$$E_g = \sum_k \eta_k \quad (2.3.24)$$

$E_g$ ...Gesamtabscheideeffizienz

$\eta_k$ ...Abscheideeffizienzen einzelner Abscheidemechanismen

Alle Abscheidemechanismen an einer einzelnen Filterfaser sind nochmals in Abbildung 2.9 skizziert.

Gravitationseffekte können in den meisten Fällen vernachlässigt werden und jeder Abscheidemechanismus kommt in einem anderen Partikeldurchmesserbereich stärker zu tragen (Abbildung 2.10). Die Abscheideeffizienz ist weiters von der Anströmgeschwindigkeit abhängig (Abbildung 2.11).

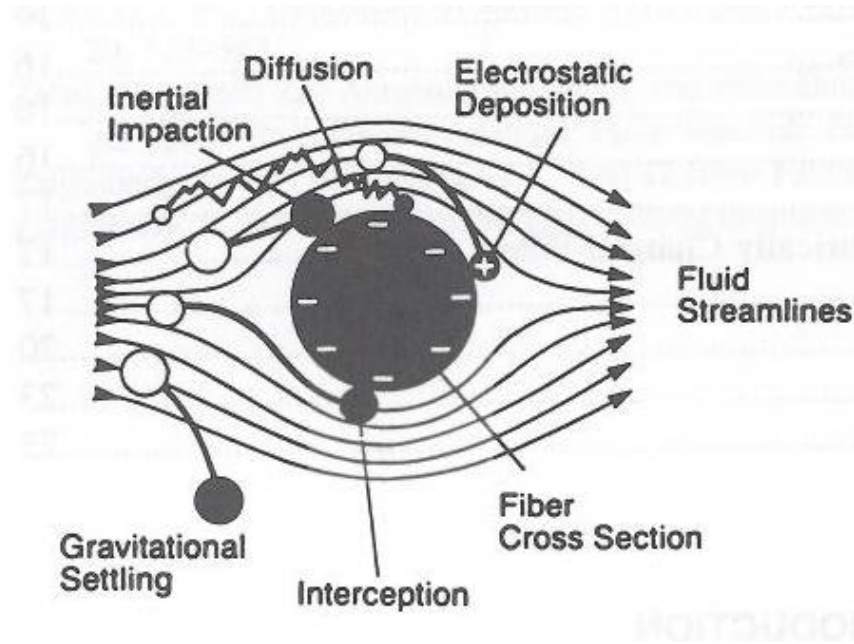


Abbildung 2.9: Abscheidemechanismen an einer einzelnen Filterfaser[16]

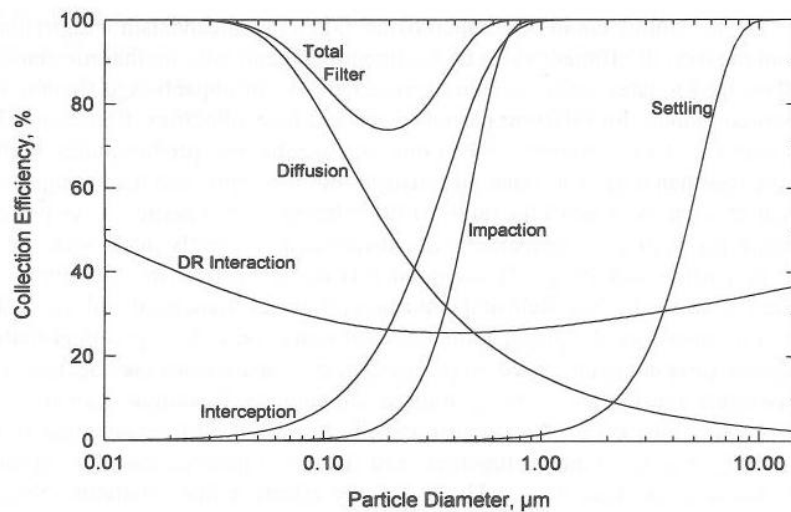


Abbildung 2.10: Verschiedene Abscheidemechanismen kommen in verschiedenen Partikelgrößenbereichen stärker zu tragen. Die Diffusionabscheideeffizienz nimmt mit zunehmendem Partikeldurchmesser ab während die Impaktions- und die Interzeptionsabscheideeffizienz zunimmt.  $t=1\text{mm}$ ,  $\alpha=0,05$ ,  $d_f=2\mu\text{m}$ ,  $U_0=0,1\text{m/s}$  [12]

Obwohl sich alle bisher erwähnten Beschreibungen nur mit Faserfiltern beschäftigen, stellte K.L. Rubow [23] fest, dass die Filtrationsmechanismen für poröse Membranfilter äquivalent zu Filtrationsmechanismen bei Faserfiltern sind. Daraus ergibt sich, dass auch mathematische Beschreibungen für Faserfilter nach geringfügigen Modifikationen für poröse Membranfilter verwendet werden können.

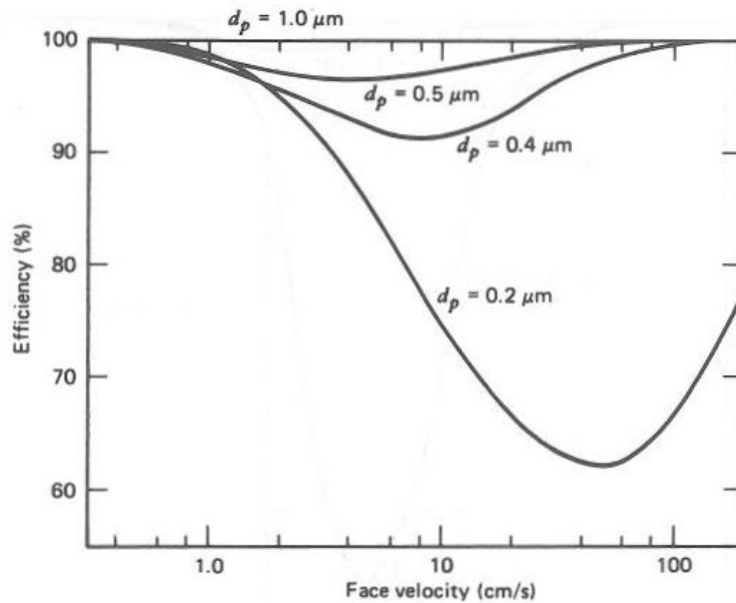


Abbildung 2.11: Abscheideeffizienz bei verschiedenen Anströmgeschwindigkeiten bei Partikeldurchmessern von  $0,2\mu\text{m}$ ,  $0,4\mu\text{m}$ ,  $0,5\mu\text{m}$  und  $1\mu\text{m}$ .  $t=1\text{mm}$ ,  $\alpha=0,05$ ,  $d_f=2\mu\text{m}$  [12]

### 2.3.3 Filterklassen und deren Eigenschaften

Wie bereits erwähnt, ist das Sammeln von Aerosolpartikeln auf Filtern eine weitverbreitete Methode, um atmosphärisches Aerosol näher zu untersuchen. Je nach verwendeter Untersuchungsmethode können verschiedene Eigenschaften des gesammelten Aerosols bestimmt werden. Häufig gemessene Größen sind die Massenkonzentration, die man mit gravimetrischen Methoden bestimmen kann, verschiedene chemische Analysen, die Rückschlüsse auf die Zusammensetzung des Aerosols ermöglichen sowie thermische Verfahren zur Untersuchung der Kohlenstoffverbindungen.

Wie M. Jantunen et al. schreiben, sollte das perfekte Filtermaterial hohe Abscheideeffizienz aufweisen, nicht hygroskopisch, chemisch inert und rein, dazu noch physikalisch robust und billig sein [4].

Nachdem dieser "perfekte" Filter aber nur in der Theorie existiert, muss man sich bei experimentellen Messungen nach wie vor, je nachdem was man untersuchen möchte, für einen passenden Filtertyp entscheiden. Eine Aufzählung der häufig verwendeten Filtermaterialien sowie für welche Messmethoden sie besonders gut geeignet sind, findet man in K.Willeke und P.A.Baron [14] ausführlich beschrieben.

Filtermaterialien, die für Aerosolmessungen eingesetzt werden, können je nach Beschaffenheit in vier verschiedene Klassen unterteilt werden. Man unterscheidet Faserfilter, poröse Membranfilter, Kapillarmembranfilter und Granulatfilter, wobei letztere bei den Messungen nicht zum Einsatz kamen und daher auch nicht näher beschrieben werden.

### **Faserfilter**

Wie man in Abbildung 2.12 und Abbildung 2.13 sieht, bestehen Faserfilter aus einzelnen Fasern, die ein Art Matte bilden, wobei ein Großteil der Fasern im rechten Winkel zum Luftstrom angeordnet ist. Faserfilter haben eine hohe Porosität (70%-99%), da sie hauptsächlich aus Zwischenräumen zwischen den einzelnen Fasern bestehen. Gängige Faserdurchmesser reichen von weniger als  $1\mu\text{m}$  bis zu einigen  $100\mu\text{m}$  wobei die Faserdicke bei den meisten Filtern variiert und nur spezielle Filter eine einzige Fasergröße aufweisen.

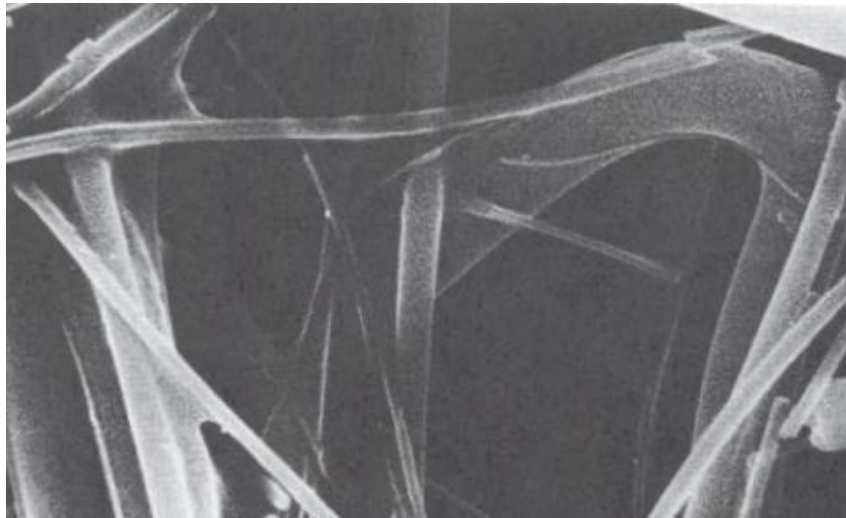


Abbildung 2.12: Elektronen Mikroskop Aufnahme - Faserfilter (4150fache Vergrößerung) [12]

Bei manchen Faserfiltern kommen so genannte Bindematerialien zum Einsatz, die bis zu 10% der Gesamtfiltermasse ausmachen können. Für Aerosolmessungen eignen sich jedoch Faserfilter ohne Bindematerialien besser, da die Bindematerialien oft die Artefaktbildung fördern. Die Bindematerialien bestehen meist aus organischen

Verbindungen, was eine Analyse der organischen Stoffe im abgeschiedenen Aerosol unmöglich macht.

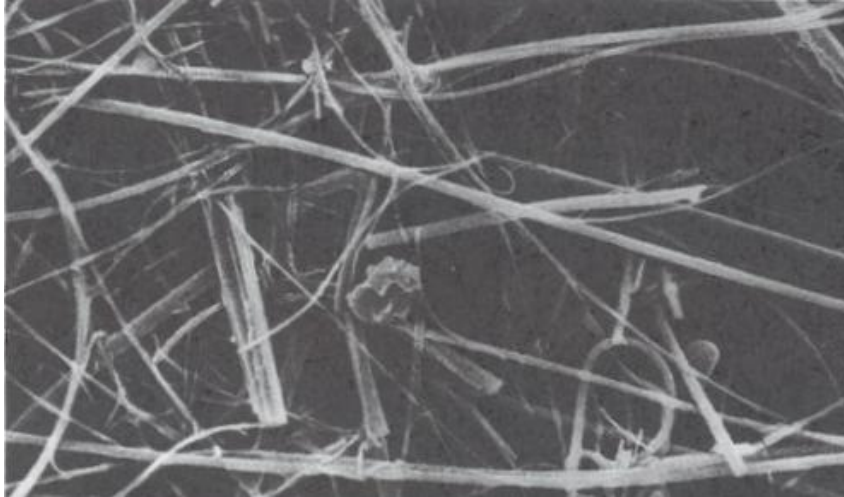


Abbildung 2.13: Elektronen Mikroskop Aufnahme - Faserfilter (800fache Vergrößerung) [12]

Die gebräuchlichsten Faserfilter bestehen aus Glasfasern, Quarzfasern, Cellulosefasern und Plastikfasern. Cellulosefaserfilter sind robust, haben geringen Druckabfall und sind sehr günstig und daher sehr flexibel einsetzbar. Allerdings muss man beachten, dass sie stark hygroskopisch sind, was ihren Einsatzbereich einschränkt. Glasfaserfilter schneiden was die Feuchteempfindlichkeit betrifft, deutlich besser ab, haben dafür jedoch einen größeren Druckabfall. Quarzfaserfilter sind weit verbreitet bei atmosphärischen Untersuchungen, da sie chemisch relativ inert und thermisch stabil sind. Aufgrund der thermischen Stabilität, ist es möglich die Filter für thermische Kohlenstoffanalysen zu verwenden.

### **Poröse Membranfilter**

Poröse Membranfilter werden aus kolloidalen Suspensionen hergestellt und haben eine sehr komplexe und einzigartige Struktur (Abbildung 2.14 und Abbildung 2.15). Die Porengröße, die vom Hersteller angegeben wird, bezieht sich meist auf Flüssigkeitsfiltration und entspricht oft nicht der wahren Porengröße. Weiters ist zu berücksichtigen, dass bei der Aerosolfiltration auch Partikel, die kleiner als die Poren sind, durch Diffusion abgeschieden werden können. Im Allgemeinen kann man sagen, dass die Abscheideeffizienz und der Druckabfall an porösen Membranfiltern recht hoch ist.

Die Porosität liegt bei porösen Membranfiltern zwischen 50% und 90% und ist somit geringer als bei Faserfiltern. Zu den gängigsten porösen Membranfiltern zählen

Celluloseesterfilter, Polyvinylchloridfilter und Teflonfilter.

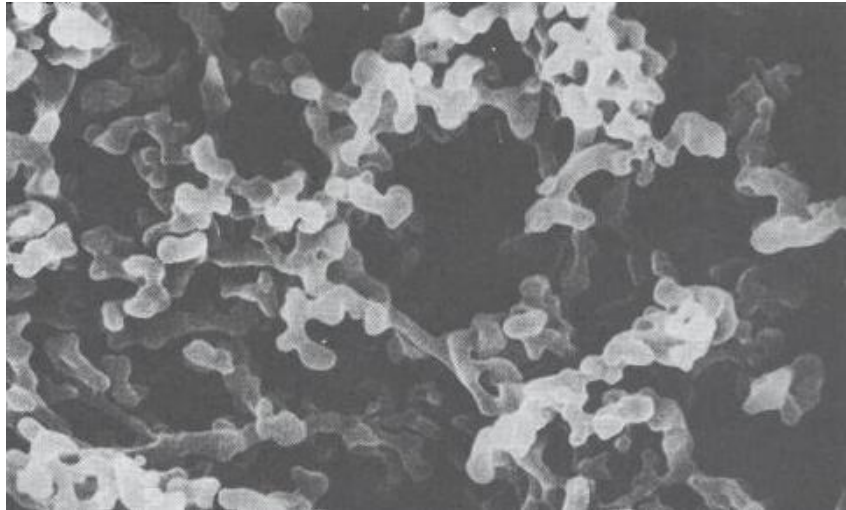


Abbildung 2.14: Elektronen Mikroskop Aufnahme - poröser Membranfilter (4150fache Vergrößerung) [12]

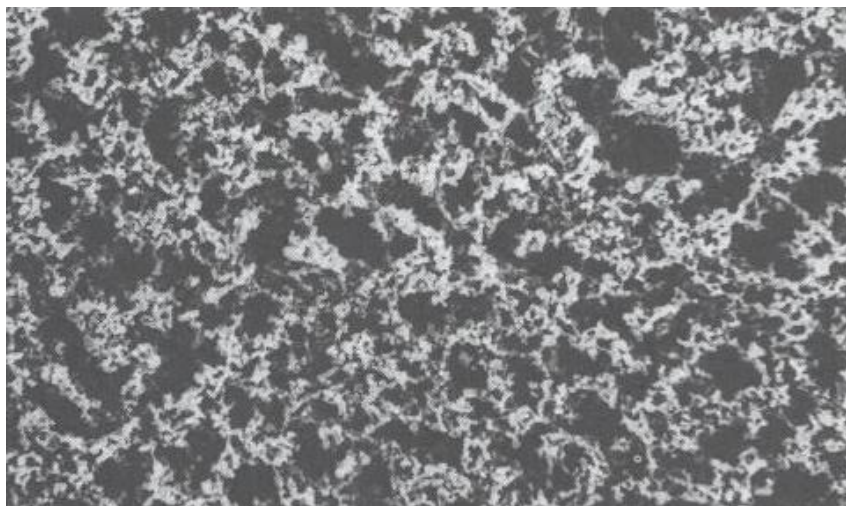


Abbildung 2.15: Elektronen Mikroskop Aufnahme - poröser Membranfilter (800fache Vergrößerung) [12]



## Kapillarmembranfilter

Kapillarmembranfilter haben im Gegensatz zu porösen Membranfiltern einheitlich große Poren und bestehen meistens aus Polycarbonatmembranen (Abbildung 2.16 und Abbildung 2.17).

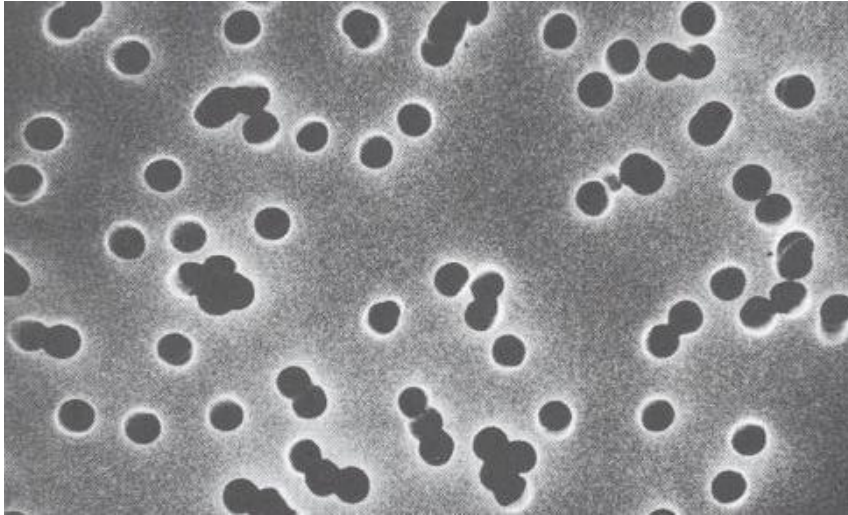


Abbildung 2.16: Elektronen Mikroskop Aufnahme - Kapillarenmembranfilter (4150fache Vergrößerung) [12]

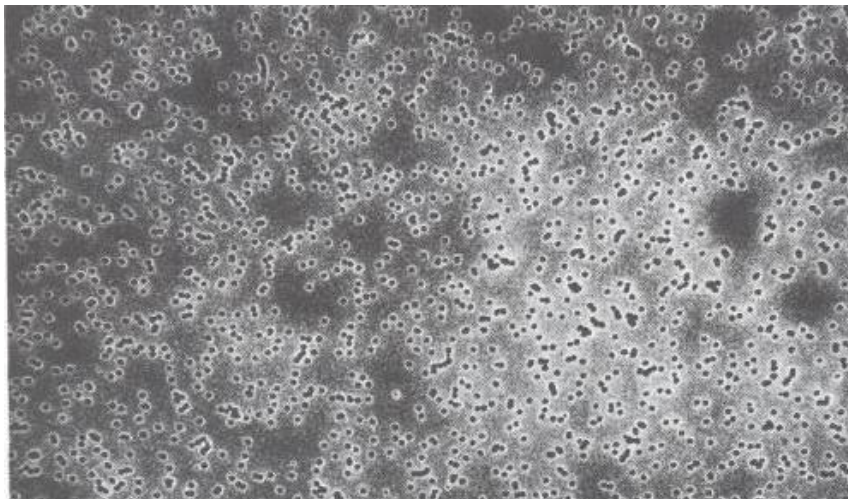


Abbildung 2.17: Elektronen Mikroskop Aufnahme - Kapillarenmembranfilter (800fache Vergrößerung) [12]

Die gleichmäßigen Poren werden durch Neutronenbeschuss der Membran und anschließende Behandlung mit Säure erzeugt. Die Anzahl der Poren wird mit der Beschussdauer gesteuert, während die Porengröße mit der Ätzzeit reguliert wird. [14]

Die Porengröße reicht bei Kapillarmembranfiltern von  $0,1\mu\text{m}$  bis  $8\mu\text{m}$  und die Porosität liegt im Bereich von 5%-10%. Die Abscheideeffizienz liegt zwischen der von Faserfiltern und porösen Membranfiltern und der Druckabfall ist deutlich höher als bei Faserfiltern.

Kapillarmembranfilter eignen sich sehr gut für Oberflächenuntersuchungsmethoden wie Elektronenmikroskopie, PIXE (Particle-Induced X-ray Emission), XRF (X-ray fluorescence spectroscopy) und XRD (X-ray Diffraction).

## 2.4 Gravimetrische Massenbestimmung und Messprotokolle

Quellen: O. Hänninen et al.[11], M. Demuyne[10], K. Koistinen et al.[2], Comité Européen de Normalisation[5][6], M. Jantunen et al.[4], Umweltbundesamt [31]

Nachdem nun die physikalischen Prinzipien der Filtration erklärt und alle wichtigen Größen zur Beschreibung der Filtration definiert wurden, soll dies nun auch für die gravimetrische Massenbestimmung, die für die Vermessung von Aerosolmassenkonzentrationen benötigt wird, durchgeführt werden.

Die genaueste Möglichkeit Aerosolmassenkonzentrationen zu bestimmen, ist ein bekanntes Volumen durch einen Filter zu ziehen, dessen Masse vorher und nachher mit gravimetrischen Messungen bestimmt wurde. Bei solchen Messungen von Aerosolmassenkonzentration unterscheidet man verschiedene Messarten. Für TSP "total suspended matter" werden Filter mit sehr hoher Abscheideeffizienz für alle Partikelgrößen verwendet und man erhält die gesamte PM (particulate matter) Masse, die im vermessenen Luftvolumen enthalten ist [4]. Bei  $\text{PM}_{10}$  oder  $\text{PM}_{2,5}$  werden nur Partikel am Filter gesammelt deren aerodynamischer Durchmesser kleiner oder gleich  $10\mu\text{m}$  bzw.  $2,5\mu\text{m}$  ist, wobei hier zu beachten ist, dass die Abscheidegrenzen keine "scharfen" Grenzen sind. Die Abscheideeffizienz von Partikel mit einem Durchmesser von  $10\mu\text{m}$  bzw.  $2,5\mu\text{m}$  liegt bei 50%.

Bei gravimetrischen Messungen wird im Allgemeinen nicht der genaue Massenwert bestimmt, da wie bei jeder Messung eine gewisse Ungenauigkeit besteht. Den Wert, den man bei der gravimetrischen Messung erhält, nennt man Wägewert. Wenn die Messmethoden sehr genau sind, spricht die Waage eine hohe Genauigkeit und eine gute Auflösung besitzt und die Standardbedingungen eingehalten werden, geht der Wägewert gegen den wahren Massenwert.

Je genauer man Massen bestimmen möchte umso größer ist die Auswirkung von einzelnen Störfaktoren. Bei  $\text{PM}_{2,5}$  Messungen zum Beispiel ist die abgeschiedene Aerosolmasse oft ein Tausendstel der Masse des Filtermaterials und beträgt nur  $10\mu\text{g}$ - $100\mu\text{g}$ . Solche Messungen erfordern daher große Präzision und schon geringe



Abweichungen vom Messprotokoll (siehe Abschnitt 2.4.1) können zu erheblichen Messfehlern führen.

Einige dieser Messfehler können nicht ausgeschaltet werden, da sie entweder unbekanntem Ursprungs oder technisch nicht vermeidbar sind. Andere wiederum sind bereits untersucht worden und können daher vermieden bzw. korrigiert werden.

Zu den Einflüssen, die gravimetrische Vermessungen verfälschen können zählen Temperatur-, Feuchte- und Druckschwankungen, die zu verändertem Luftauftrieb führen können sowie elektrostatische Kräfte, die durch die Aufladung von Filtern entstehen können. Auch beim Hantieren mit den Filtern kann es zu positiver oder negativer Kontamination kommen, was den Massenwert beeinflusst. Außerdem hat auch die Lagerdauer der Filter einen Einfluss auf die Massenwerte.

Wenn man nun davon ausgeht, dass die Störfaktoren unabhängig voneinander sind, kann man sie sukzessive identifizieren, berechnen und korrigieren so wie das von Hänninen et al. [11] für Teflonfilter gemacht wurde. Zuerst werden aber nochmals die gängigen Messprotokolle und Standardvorgehensweisen zur PM Bestimmung erläutern.

#### 2.4.1 Messprotokolle und Standards

Wie bereits erwähnt, ist für genaue gravimetrische Messungen die Festlegung von Messprotokollen unumgänglich. Wenn die Bedingungen unter denen Messungen durchgeführt werden, nicht genau festgelegt sind, resultieren daraus zwei große Probleme. Einerseits kann es bei Massenkonzentrationsbestimmungen dazu kommen, dass fehlerhafte Ergebnisse gemessen werden, wenn die Bedingungen bei der ersten und bei der zweiten Messung nicht gleich sind. Andererseits sind die Ergebnisse von verschiedenen Labors nicht miteinander vergleichbar, wenn keine einheitlichen Verfahren und Vorgehensweisen Anwendung finden.

Aus diesem Grund gibt es internationale Messvorschriften, die genau festlegen wie  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$  gemessen werden müssen. Für Europa werden diese Messvorschriften vom CEN (Comité Européen de Normalisation) festgelegt und für die USA liegt dies im Zuständigkeitsbereich der US EPA (Environmental Protection Agency), die die sogenannten NAAQS (National Ambient Air Quality Standards) bestimmt. Hierbei werden einerseits Obergrenzen für Tages-, Monats-, Jahresdurchschnittsaerosolkonzentrationen festgelegt sowie die Methoden mit denen die Aerosolkonzentrationsmessungen durchgeführt werden.

Für Österreich findet man die gesetzlichen Grenzwerte für Luftqualitätsstandards auf der Webseite des Umweltbundesamts [31]. Der Jahresmittelwert der Aerosolmassenkonzentration für  $PM_{10}$  darf  $40\mu\text{g}/\text{m}^3$  nicht überschreiten. Der Tagesmittelwert der Aerosolmassenkonzentration darf bis Ende 2009 insgesamt 30mal den Grenzwert von  $50\mu\text{g}/\text{m}^3$  überschreiten. Ab 2010 wird die höchst zulässige Zahl der Überschreitungen auf 25 abgesenkt.

In Europa gibt es für  $PM_{10}$  Messungen die EN12341:1999 Messvorschrift [5] und für  $PM_{2,5}$  Messungen die 14907:2005 Messvorschrift [6]. Bei diesen Messvorschriften

wird vom Filtertyp über die Aerosolsammelmethode bis zu den Bedingungen unter denen die Massenbestimmungen erfolgen, alles festgelegt. Da sich die vorliegende Arbeit auf gravimetrische Messungen beschränkt, werden nur die dafür relevanten vorgeschriebenen Bedingungen behandelt.

Die vorgeschriebenen Bedingungen während des Wägens laut den oben genannten europäischen Messvorschriften sind  $20^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$  für die Temperatur sowie  $50\% \pm 5\%$  für die relative Luftfeuchte. Weiters ist die Zeitdauer, in der die Filter diesen Bedingungen ausgesetzt sein müssen festgelegt, wobei es hier verschiedene Protokolle gibt. Hänninen et al.[11] untersuchten den Einfluss der Lagerdauer des Filters bei Teflonfiltern näher (Abschnitt 2.4.2). Die Akklimatisierungszeit von 24h vor der Wägung ist ein gängiger Wert und wurde daher in der vorliegenden Arbeit auch eingehalten.

## 2.4.2 Störeinflüsse und Korrekturfaktoren

Störeinflüsse bei gravimetrischen Bestimmungen von Aerosolkonzentrationen können sich einerseits auf das Aerosol auswirken oder auf das Filtermaterial selbst. Im Weiteren werden nur die Auswirkungen der Störeinflüsse auf Filtermaterialien behandelt.

### Elektrische Ladung

Bei gravimetrischen Messungen können sich Filter beim Hantieren elektrisch aufladen und in weiterer Folge lädt sich auch die Waagschale auf. Diese Ladungen in der Waagschale können eine gegensätzliche Bildladung in der nächsten metallischen Oberfläche erzeugen, wodurch es zu einer anziehenden Kraft kommt. Bei vielen Waagen ist zwischen der Waagschale und der Bodenplatte der Waage nur ein knapper Abstand, womit das oben beschriebene Szenario durchaus Relevanz für gravimetrische Bestimmungen bekommt. Je nachdem ob sich die nächste leitende Oberfläche über oder unter der Waagschale befindet, wird der Wägewert aufgrund von Ladungseffekten unterschätzt oder überschätzt.

Um eine durch elektrostatische Effekte verursachte Über- bzw. Unterschätzung der Masse des Wägeguts zu vermeiden, wurden verschiedene Methoden zur Entladung entwickelt. Die meisten davon basieren auf  $\alpha$ -Strahlern, die entweder in der Waage oder außerhalb der Waage angebracht sind. Durch die  $\alpha$ -Strahler wird die Luft ionisiert und die Ionen gleichen die Ladungen am Filtermaterial aus.

Eine andere Methode um Ladungseffekte zu vermeiden ist die Verwendung eines Faraday-Käfigs statt einer einfachen Waagschale, was aber oft die Schwankungen des Wägewerts vergrößert [2].

Ladungseffekte können also zu großen Verfälschungen von Messergebnissen führen, sind aber mit Strahlungsquellen recht gut in den Griff zu bekommen.

## Luftauftrieb

Der Luftauftrieb ist ein Störfaktor, der aus Abweichungen der Größen Temperatur, Druck und relativer Feuchte von deren vorgeschriebenen Werten resultiert. Da diese Werte den momentanen meteorologischen Bedingungen entsprechend variieren, ist es notwendig sich eine Korrekturfunktion zu überlegen.

Die Änderung des Luftauftriebs resultiert aus der Änderung der Luftdichte, die wiederum von Druck, Temperatur und relativer Feuchte abhängt. Koistinen et al. [2] geben für die Berechnung der Luftdichte Gleichung (2.4.1) an, die schön zeigt, dass der Parameter Druck den größten Einfluss auf den Luftauftrieb hat.

$$\rho_a = \frac{3,484P - (0,00252T - 0,02058)RH}{273,2 + T} \quad (2.4.1)$$

$\rho_a$ ...Luftdichte[kg/m<sup>3</sup>]  
P...Druck[kPa]  
T...Temperatur[°C]  
RH...Relative Feuchte[%]

Zu erwähnen ist, dass die relative Luftfeuchte nicht nur in den Luftauftrieb eingeht, sondern auch einen direkten Einfluss auf gravimetrische Messungen hat, da bei steigender relativer Feuchte mehr Wasser an allen Teilen der Waage sowie an der Probe zu finden ist.

Für Wägungen, die in Luft durchgeführt werden, kann man den Auftrieb nach Gleichung (2.4.2) berechnen, wobei  $\rho_a$  nach Gleichung (2.4.1) berechnet wird.

$$m = R \frac{1 - \frac{\rho_a}{\rho_w}}{1 - \frac{\rho_a}{\rho_f}} \quad (2.4.2)$$

m...Massenwert[g]  
R...Wägewert[g]  
 $\rho_a$ ...Luftdichte[kg/m<sup>3</sup>]  
 $\rho_w$ ...Dichte des Kalibrierungsgewichts[kg/m<sup>3</sup>]  
 $\rho_f$ ...Dichte der Probe[kg/m<sup>3</sup>]

Hänninen et al. [11] errechneten mit Hilfe der gesammelten Ergebnisse eine lineare Funktion, die es ermöglicht, den Einfluss des Luftauftriebs aus den Ergebnissen herauszurechnen, die aber nur für Teflonfilter Gültigkeit besitzt und daher hier nicht weiter behandelt wird.

## Lagerdauer der Filter

Auch die Lagerdauer der Filter kann einen Einfluss auf gravimetrische Messungen haben. Allerdings sind diese Effekte noch nicht systematisch für verschiedene Filtermaterialien untersucht und quantifiziert.

Hänninen et al. [11] fanden bei der Untersuchung der Teflonfilter eine empirische Formel zur Korrektur der Einflüsse von unterschiedlichen Lagerdauern, allerdings wird nicht näher auf die Mechanismen dahinter eingegangen. Man geht grundsätzlich davon aus, dass Diffusions-, Absorptions- und Sedimentationsprozesse zu einer Veränderung des Massenwertes führen.

Zur Korrektur von Messungen mit Teflonfiltern kann ohne weiteres die empirische gefundene Formel von Hänninen et al. [11] verwendet werden. Für andere Filtertypen hingegen, müsste erst der Zusammenhang zwischen Lagerdauer und der Filtermasse vermessen und eine Korrekturfunktion ermittelt werden.

## Relative Feuchte

Auch beim Einfluss der relativen Feuchte auf die Massenbestimmung von Filtern geben Hänninen et al. [11] nicht mehr als eine empirische Korrekturfunktion für Teflonfilter an.

Der Einfluss der relativen Feuchte kann je nach verwendetem Filtermaterial stark variieren. Für nicht hygroskopische Filtermaterialien geben K. Koistinen et al. [2] an, dass bei  $PM_{2,5}$ -Messungen der Einfluss der relativen Feuchte vernachlässigt werden kann, solange sie unter 65% bleibt.

Zur Untersuchung des Einflusses der relativen Luftfeuchte auf Filtermaterialien machte auch schon M. Demuyneck [10] Untersuchungen mit Glasfaserfiltern und Cellulosefiltern. Dabei kam er zu dem Ergebnis, dass verschiedene Filtermaterialien unterschiedlich, auf den Einfluss von verschiedenen relativen Luftfeuchten, reagieren. Die Ergebnisse dieser Arbeit können allerdings nicht verallgemeinert werden, da eigentlich nur qualitative Aussagen gemacht werden.

## Filterkontamination

Beim Hantieren mit den Filtern kommt es immer wieder zu positiven Kontaminationen, indem zusätzliches Material auf den Filter gelangt. Auch negative Kontamination, sprich Verlust von abgeschiedenem Aerosol auf dem Filter, lässt sich meist nicht vermeiden. Für die vorgenommenen Messungen kann zwar kein Verlust von abgeschiedenem Aerosol auftreten, aber durch das Hantieren, können Teile des Filters abbrechen und zu negativer Kontamination führen.

## Kapitel 3

# Messaufbau und Vorbereitungen

Ziel dieses Kapitels ist es, sämtliche Vorbereitungen, die vor dem Start der eigentlichen Messungen durchgeführt werden mussten, zu beschreiben. Weiters werden der Versuchsaufbau und die einzelnen Geräte, die im Aufbau integriert sind, erklärt. Zum Abschluss wird auf die Computerprogramme, die zur Steuerung der Messgeräte und zur Datenaufzeichnung verwendet wurden, näher eingegangen.

### 3.1 Verwendetes Messprotokoll

Wie bereits erwähnt, ist es für die Reproduzierbarkeit von gravimetrischen Messungen äußerst wichtig, dass ein Messprotokoll, mit vorgegebenen Bedingungen, unter denen die Messungen stattfinden, festgelegt wird.

Ziel meiner Arbeit ist es, die Auswirkungen einer Änderung der CEN Messvorschriften bezüglich der relativen Luftfeuchte von 50% auf 30%-40% zu untersuchen. Außerdem sollte auch überprüft werden, ob 24 Stunden Akklimatisierungszeit für Filtermaterialien, die relativen Luftfeuchten von bis zu 90% ausgesetzt waren, ausreichend ist, was jedoch aufgrund der in Kapitel 5 beschriebenen Gründe nicht möglich war.

Für die Untersuchungen, wurde eine Feuchteammer, die im Abschnitt 3.3 genauer beschrieben ist, verwendet. Mit Hilfe von verschiedenen Salzlösungen wurden für festgelegte Zeiträume verschiedene relative Feuchten in der Kammer eingestellt. Zuerst wurde für mehr als 24 Stunden eine relative Feuchte von 30%-40% erzeugt. Eine genaue Einstellung der relativen Feuchte in der Kammer erweist sich über längere Messreihen hinweg als schwierig. Die dafür verantwortlichen Aspekte werden im nächsten Unterkapitel noch genauer erläutert.

In Abständen von mehr als 24 Stunden wurde die relative Feuchte in der Kammer verändert. Wie gesagt, wurde beim ersten Messschritt mit einer relativen Feuchte von 30%-40% gearbeitet, die dann im zweiten Messintervall auf 50% angehoben wurde. Die dritte Messreihe erfolgte bei ca. 90% relative Feuchte und in den darauffolgenden Messintervallen wurde die relative Feuchte zuerst auf 50% und zum Abschluss wieder

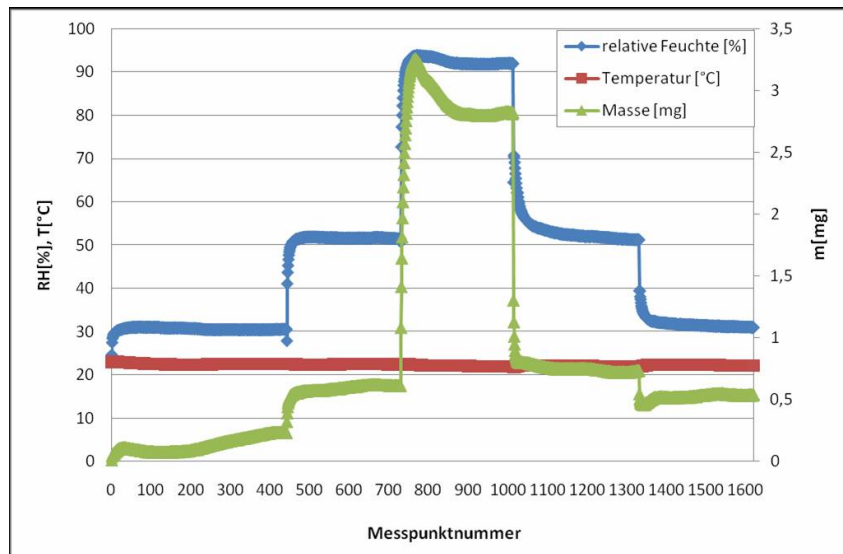


Abbildung 3.1: Messprotokoll 1 - Glasfaserfilter - relative Feuchte-, Temperatur- und Massenverlauf während der gesamten Messdauer eines Messzykluses

auf 30%-40% abgesenkt. Ein gesamter Messzyklus für die Vermessung eines Filters dauert somit etwas mehr als fünf Tage.

Während der gesamten Messdauer wurde in Abständen von fünf Minuten die relative Feuchte, die Temperatur und der Wägewert des Filters aufgezeichnet. Eine bildliche Darstellung der Werte, die unter Verwendung dieses Messprotokolls (Messprotokoll 1) gesammelt wurden, findet man in Abbildung (3.1).

Grundsätzlich war das Ziel die Dauer von 24-25 Stunden der einzelnen Messschritte einzuhalten. Leider war dies aber aufgrund von Wochenenden und Feiertagen nicht immer möglich. Dies muss bei der anschließenden Datenauswertung berücksichtigt werden.

Eine kleine Änderung des Messprotokolls 1 wurde im Laufe der Messungen durchgeführt. Anfänglich wurde die Waage, zu Beginn jedes Messzykluses bei geöffneter Kammer und aufgelegtem Filter, auf Null gesetzt. Die Temperatur und die relative Feuchte wurden dabei notiert und anschließend wurde die Kammer verschlossen und der Messzyklus gestartet. Während der Messungen wurde die Kammer, bei der Umstellung der Feuchten, jeweils kurz geöffnet.

Da jedoch nicht nur die absolute Massenzunahme des Filters sondern auch die prozentuelle Massenzunahme des Filters von Interesse ist, wurde der oben beschriebene Vorgang ein wenig verändert. Die Waage wurde nun vor dem Auflegen des Filters Null gesetzt, damit die Gesamtmasse des Filters auch mit aufgezeichnet werden konnte (Messprotokoll 2).

Die Ergebnisse aller Messungen sind in Kapitel 4 zu finden.

## 3.2 Herstellung der Salzlösungen

Wie im Theorieteil schon beschrieben, kann mit Hilfe von Salzlösungen, die relative Feuchte in einer Kammer reguliert werden. Da auch mit niedrigen relativen Feuchten gearbeitet wurde, ist Magnesiumchlorid ein geeignetes Salz für die Experimente. Die Sättigungskonzentration von Magnesiumchlorid liegt bei 20°C bei 542g/l was eine relative Feuchte von 33.1% in einem abgeschlossenen Gefäß erzeugt. Falls man noch tiefere relative Feuchten erzeugen möchte, ist Lithiumchlorid zu empfehlen.

Die Abhängigkeit der relativen Feuchte von der gelösten Menge Magnesiumchlorid ist bei Low [28] zu finden (Abbildung 3.2). Allerdings ist die Abhängigkeit hier nur bis zu einer relativen Feuchte von 50% beschrieben und nicht bis zur Sättigungsmenge. Außerdem muss beachtet werden, dass die Angaben in der Abbildung für reines Magnesiumchlorid gelten und nicht für Magnesiumchlorid-Hexahydrat. Da bei der Herstellung der Salzlösungen Magnesiumchlorid-Hexahydrat verwendet wurde, musste dementsprechend mehr Salz verwendet werden, um die gewünschten relativen Feuchten zu erzeugen.

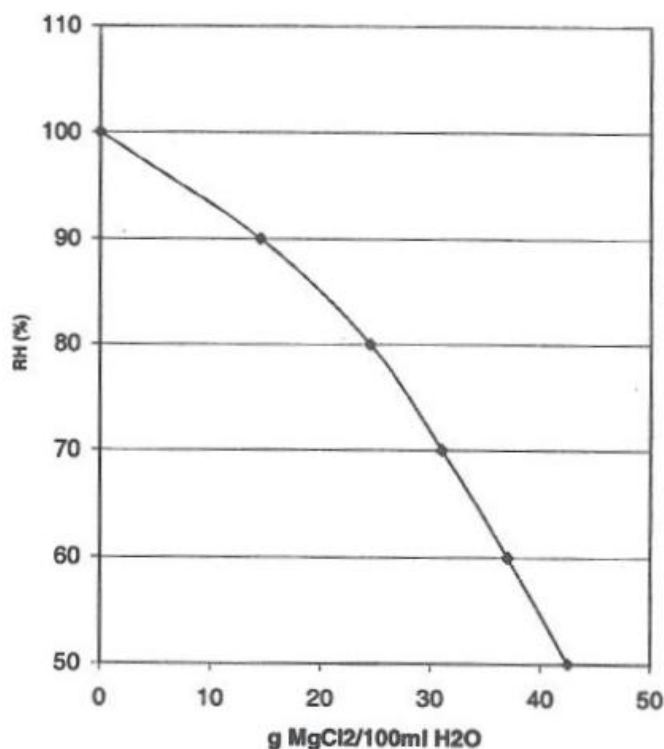


Abbildung 3.2: Relative Feuchte in Abhängigkeit von gelöster Menge Magnesiumchlorid [28]

Aus diesem Grund wurden die Angaben aus Abbildung 3.2 nur als Richtwer-

te verwendet und die Lösung nach der Herstellung zur Überprüfung mit einem Feuchte- und Temperaturfühler vermessen und wenn notwendig nachjustiert. Als Richtwert für die Lösung zur Erzeugung der geringsten relativen Feuchte wurde die Sättigungskonzentration herangezogen.

Mit dieser Vorgehensweise konnten, bei gleichbleibender Temperatur Lösungen hergestellt werden, die relative Feuchten mit einer Genauigkeit von 2% erzeugen.

Zwei Faktoren, die noch berücksichtigt werden müssen sind, die Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks und damit der relativen Feuchte und der Feuchtegradient in der Feuchteammer.

Wie bereits erwähnt, ist die relative Feuchte, die sich über einer Salzlösung einstellt, von der Temperatur abhängig. Wenn nun die Temperatur während der Messungen variiert, kann man davon ausgehen, dass die Lösungen in der Feuchteammer leicht abweichende Feuchten erzeugen.

Außerdem ist die Kammer, in der die verschiedenen relativen Feuchten erzeugt wurden, nicht hundertprozentig dicht und es ist daher sehr wahrscheinlich, dass sich ein Feuchtegradient einstellt und die relativen Feuchtwerte direkt an der Lösungsoberfläche und in Höhe der Waagschale unterschiedlich sind.

Beide Effekte werden jedoch bei den Messungen berücksichtigt indem der Feuchte- und Temperaturfühler, der sich auf Höhe der Waagschale befindet, Temperatur und relative Feuchte aufzeichnet.

Im Laufe der Messungen wurde festgestellt, dass trotz sorgfältiger Reinigung der Kammer beim Wechseln der Salzlösungen eine leichte Durchmischung der verschiedenen Lösungen nicht zu vermeiden ist. Verursacht wird diese Durchmischung durch Salzurückstände an der Unterkante der Kammer, die auch durch gründliches Reinigen nicht entfernt werden konnten. Die Lösungen wurden zwar im Laufe der Zeit erneuert, um annähernd konstante relative Feuchtwerte erzeugen zu können, allerdings sind gewisse Schwankungen nicht vermeidbar.

Durch die Aufzeichnung durch den Feuchte- und Temperaturfühler ist auf jeden Fall sichergestellt, dass die durch die aufgezählten Gründe verursachten Schwankungen der relativen Feuchte dokumentiert werden.

### 3.3 Beschreibung der Feuchteammer

Alle Messungen wurden mit Hilfe einer Feuchteammer durchgeführt, die auch schon in leicht adaptierter Form in den Arbeiten [7], [25], [26], [27] benutzt wurde (Abbildung 3.3).

Mit Hilfe von Salzlösungen, deren Herstellung im vorigen Kapitel beschrieben wurde, können in der Kammer unterschiedliche relative Feuchten eingestellt werden. Die eigentliche Kammer besteht aus einem zylindrischen Glasgefäß, das an einer Metallkonstruktion angebracht ist. Die Metallkonstruktion ist an einer tragenden Mauer des Gebäudes befestigt, um die Messgenauigkeit der Waage nicht durch Vibrationen und Schwingungen zu vermindern. Der Boden der Kammer besteht aus einer Plastikschale, die mit Hilfe einer Hebevorrichtung angehoben und abgesenkt



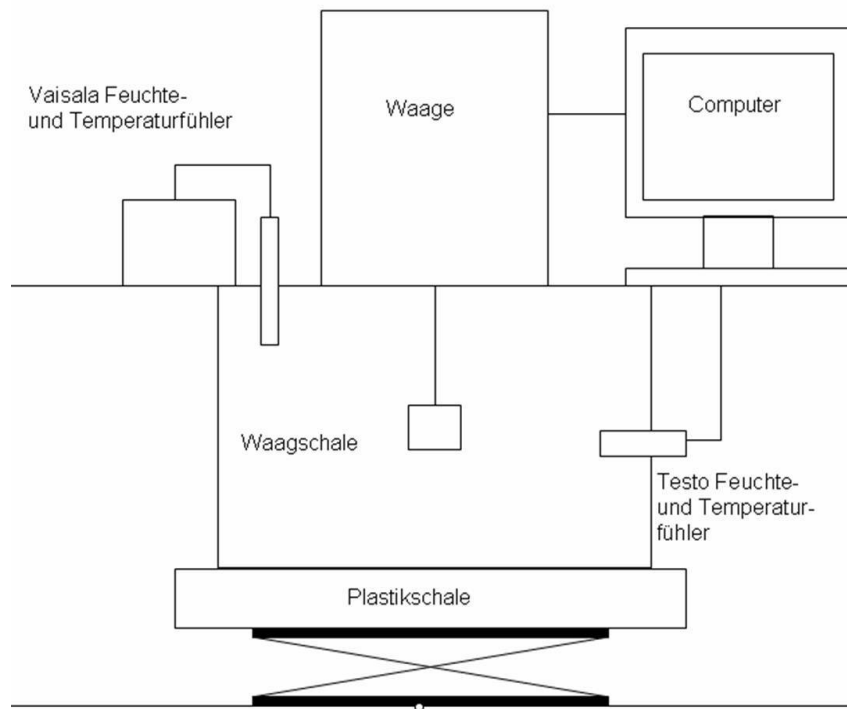


Abbildung 3.3: Schematische Aufbau der verwendeten Feuchte- und Temperaturmessung

werden kann, um die Kammer zu öffnen und zu schließen. Außerdem dient die Plastikschale als Gefäß für die oben erwähnten Salzlösungen, die zur Erzeugung der verschiedenen relativen Feuchten benötigt werden.

Auf der Metallkonstruktion direkt über dem zylindrischen Gefäß befindet sich eine Waage der Firma Mettler des Typs AT-201. Die Messungen des Wägeguts innerhalb der Kammer werden mit Hilfe des für Außenmessungen vorgesehenen Hakens durchgeführt. An diesem Haken wurde ein Stück Draht, das vorher in die passende Form gebogen und gereinigt wurde, montiert. An diesem Draht wurde eine kleine Waagschale befestigt und anschließend wurde überprüft, ob alle Teile freibeweglich montiert sind, um Störungen des Wägeregebnisses zu vermeiden. Die Waagschale besteht aus Aluminium und hat einen Durchmesser von ca. 5cm und eine Umrandung mit knapp 1cm Höhe. Die Aufzeichnung der Messergebnisse erfolgt mit Hilfe eines Computerprogramms, das auch die Steuerung der Waage ermöglicht.

Neben der Waage ist in den Aufbau noch ein Feuchte- und Temperaturfühler der Firma Testo integriert, der genau wie die Waage mit Hilfe eines Computers gesteuert werden kann. Die Sensoren wurden in der Kammer auf Höhe der Waagschale angebracht, um eventuelle Feuchtegradienten mitzuberücksichtigen.

Ein weiterer Feuchte- und Temperaturfühler der Firma Vaisala, der im Messaufbau integriert war, musste im Laufe der Messungen erneuert werden, da der Feuchte-

sensor ausfiel. Da dieser Fühler nicht auf gleicher Höhe angebracht ist, wie der Fühler der Firma Testo, liefern die zwei Messgeräte oft abweichende Resultate. Nachdem der besagte Fühler aber nur für schnelle visuelle Überprüfungen von laufenden Messungen verwendet wurde und nicht für die Aufzeichnung der Daten, waren die leicht abweichenden Ergebnisse nicht weiter relevant.

Da für die Anbringung aller Messgeräte innerhalb der Kammer einige Löcher in der Kammerwand notwendig sind, musste vor der ersten Messung eine Dichteprobe durchgeführt werden.

Die Durchgangslöcher für sämtliche Feuchte- und Temperaturfühler sind mit passenden Gewinden versehen und die Gewinde an den Geräten wurden vor dem Einschrauben mit Teflonband umwickelt, um Lecks zu vermeiden. Das Durchgangsloch für die Waage ist ein wenig problematischer, da gewährleistet sein muss das sämtliche Waagenteile frei schwingen können. Die Abdichtung mit Hilfe eines Ballonreifens funktioniert gut, wobei man jedoch nicht von einer hundertprozentigen Abdichtung ausgehen kann.

Die Dichteprobe, die mit reinem Wasser durchgeführt wurde, lieferte relative Feuchtwerte von 94%, was für die durchgeführten Messungen ausreicht.

### **3.4 Verwendete Geräte: Waage, Feuchte- und Temperaturfühler**

Die in der Feuchtekammer eingebauten Messgeräte werden in diesem Unterkapitel näher beschrieben.

#### **3.4.1 Waage**

Die für die Messungen verwendete Waage stammt von der Firma Mettler und hat die Typenbezeichnung AT-201. Die Steuerung der Waage erfolgt genau wie die Aufzeichnung der Massenwerte mit Hilfe eines Computers.

Laut Hersteller sind mit der Mettler AT-201 Messungen mit einer Genauigkeit von bis zu 0,01mg möglich, wobei dies für Messungen innerhalb der Wägekammer der Waage gilt und es fraglich ist, ob diese Genauigkeit auch für eine Kammer mit der Größe der verwendeten Feuchtekammer gegeben ist. Außerdem waren Faktoren wie Temperatur und Druck während eines Messzykluses nicht immer gleich, was zu verschieden großem Luftauftrieb und somit zu einer Verfälschung des Messergebnisses führen kann.

Um die Genauigkeit der Waage bei der Verwendung in der Feuchtekammer einer genaueren Untersuchung zu unterziehen, wurden für mehrere Tage Masse-, Temperatur- und Feuchtwerte bei relativer 30% Feuchte und leerer Waagschale aufgezeichnet. Für diese Messung wurde, wie auch bei allen anderen Messungen, die Autokalibrierfunktion der Waage ausgeschaltet. Bei aktivierter Autokalibration könnten nämlich kleine Massenveränderungen eventuell nicht registriert werden.

Nach Mittelwertbildung über alle aufgezeichneten Massenwerte, konnte eine Standardabweichung von 0,1mg berechnet werden und die maximale Schwankungsbreite der Werte lag bei 0,4mg. Während der Messperiode war die relative Feuchte, nachdem sich ein Gleichgewichtszustand in der Kammer eingestellt hatte, innerhalb der Messgenauigkeit konstant und die Schwankungsbreite der Temperatur betrug 1,2°C.

Nach eingehender Betrachtung der Messwerte, scheint in Teilbereichen der Datenreihe eine Korrelation zwischen Temperatur und Masse zu bestehen. Die erste Vermutung, die eine Erklärung für die temperaturabhängigen Schwankungen liefern sollte, waren Luftauftriebseffekte.

Nach weiterer Recherche und einigen durchgeführten Berechnungen, erwiesen sich die Auftriebseffekte als viel zu klein, um Schwankungen in diesen Größenordnungen erklären zu können. K. Koistinen et al. [2] geben als Größenordnungsbereich für temperaturbedingte bzw. auftriebsbedingte Massenschwankungen, Werte von 0,01mg bei einer Temperaturschwankungsbreite von 10°C an, was größenordnungsmäßig mit meinen eigenen Berechnungen übereinstimmt. Bei der ersten Messung mit einem Filter wurde festgestellt, dass die Massenzunahmen deutlich größer als die beobachteten Schwankungen waren (ca. Faktor 10). Der verschlechterten Genauigkeit der Waage, die wahrscheinlich durch den Aufbau und das Abschalten der Autokalibrierung bedingt ist, wurde daher keine weitere Beachtung geschenkt.

Neben den Dichteproben und der Untersuchung der Langzeitstabilität der Waage, musste im Vorfeld noch untersucht werden, ob irreversible Massenzunahme an der Waagschale bei verwendetem Messprotokoll auftritt. Hierfür wurde das in Unterkapitel 3.1 beschriebene Messprotokoll 1 bei leerer Waagschale durchgeführt. Daten hierzu findet man im Kapitel 4 unter Leermessungen. Die Leermessungen legen einen Grenzwert für die irreversible Massenzunahme fest. Alle irreversiblen Massenzunahmen, die unter diesem Grenzwert liegen, werden als nicht signifikant eingestuft.

### 3.4.2 Feuchte- und Temperaturfühler

In der Feuchtekammer waren am Ende der Messungen zwei funktionstüchtige Feuchte- und Temperaturfühler integriert.

Für den Fühler des Typs Testostor 171 von der Firma Testo konnte mit der zugehörigen Software mit Hilfe eines PCs die gesammelten Daten ausgelesen und aufgezeichnet werden.

Vor Beginn der Messung wurde der Feuchtefühler kalibriert, nach der vom Hersteller beschriebenen Vorgehensweise. Dazu wurden zwei gesättigte Lösungen, mit deren Hilfe man bekannte relative Feuchten erzeugen kann, hergestellt.

Für den niedrigen Feuchtebereich wurde Lithiumchlorid (RH = 11,3%) verwendet und für den hohen Messbereich Natriumchlorid (RH = 75,5%). Der Fühler wurde für mehr als eine Stunde mit einem luftdichten Aufsatz auf einem Gefäß, das eine der Lösungen enthielt, befestigt. Nach einer Stunde wurde der Ist-Wert mit dem Soll-Wert verglichen und mit der automatischen Kalibrationsfunktion des Fühlers

auf den korrekten Wert eingestellt.

Derselbe Vorgang wurde für die zweite Lösung wiederholt und im Anschluss nochmals für die erste Lösung. Dieser Vorgang wurde solange wiederholt, bis der Ist-Wert dem Soll-Wert in beiden Fixpunkten innerhalb der Messgenauigkeit entsprach.

Zu beachten ist hierbei, dass die Temperatur für die der Sollwert der relativen Feuchte angegeben ist eingehalten wird. Falls die Temperatur abweicht muss ein entsprechender relative Feuchtwert aus Tabelle 3.1 abgelesen werden, was aber hier nicht notwendig war.

Tabelle 3.1: Kalibrationstabelle nach Greenspan

T[°C]	RH LiCl	RH NaCl
0	*	75,5
5	*	75,7
10	*	75,7
15	*	75,6
20	11,3	75,5
25	11,3	75,3
30	11,3	75,1
35	11,3	74,9

Laut Angaben des Herstellers beträgt die Messgenauigkeit des Fühlers nach der Kalibrierung 2% für die relative Feuchte und 0,5°C für die Temperatur.

Der zweite Fühler, der nur zur visuellen Kontrolle der Werte während der Messungen diente, war ein Vaisala HMP45 mit dem Anzeigegerät HMI41. Da der Fühler etwas höher positioniert war als der Testo-Fühler, kann es zu abweichenden Messergebnissen der Geräte bezüglich der relativen Feuchte kommen.

Auch dieser Feuchtefühler wurde nach dem oben beschriebenen Schema kalibriert. Die Genauigkeit des Geräts beträgt laut Angaben des Herstellers 2% für die relative Feuchte und 0,3°C für die Temperatur.

### 3.5 Beschreibung der Programme

Zu Beginn der Experimente wurde der Feuchtefühler der Firma Testo von der dafür vorgesehenen Software und die Waage mit einem Softwarepaket von Windmill Software Ltd gesteuert.

Da kurz nach Beginn der ersten Testmessungen der Messcomputer einen Defekt hatte, musste die gesamte Steuerungssoftware auf einem neuen Gerät installiert werden. Für die Software des Feuchte- und Temperaturfühlers war dies recht schnell und problemlos gemacht, jedoch war das Softwarepaket zur Steuerung der Waage nicht mehr verfügbar und konnte auch von der alten Festplatte nicht mehr vollständig wieder hergestellt werden.

Für die weiteren Messungen, wurde daher mit LabVIEW ein Programm zur Steuerung der Waage und zum Speichern der Messdaten entwickelt. Das Programm liest in regelmäßigen zeitlichen Abständen, die von der Waage gemessen Werte aus und speichert diese ab.

Beide Programme wurden so eingestellt, dass sie alle fünf Minuten Masse, Temperatur und relative Feuchte aufzeichnen. Da mit zwei verschiedenen Programmen gearbeitet wurde, konnten nicht beide genau gleichzeitig gestartet werden. Es liegen somit einige Sekunden zwischen der Aufzeichnung des Massenwerts und der Aufzeichnung der Feuchte- und Temperaturwerte. Da sich diese Werte in der Kammer aber nur langsam verändern und der zeitliche Abstand zwischen den Einzelmessungen viel größer als diese Abweichung ist, muss sie nicht weiter berücksichtigt werden.

## Kapitel 4

# Messungen

Während des letzten Jahres wurden insgesamt 45 Messungen mit verschiedenen Filtermaterialien nach den in Kapitel 3.1 beschriebenen Messprotokollen durchgeführt. Einige Messreihen sind aufgrund von Computerausfällen, verursacht durch Stromausfälle, Datenverlust und anderen Vorfällen nicht vollständig. Ein weiterer Teil der Messungen wurde aufgrund anderer Störungen aussortiert.

Eine dieser Störungen ist Salzlösung, die sich auf der Waagschale befinden kann. Meist wird dies durch das Platzen von Luftblasen in der Salzlösung verursacht. Auch beim Schließen der Kammer kann Salzlösung auf die Waagschale hochspritzen. Diese Effekte können vermieden werden indem man alle Blasen in der Lösung zum Platzen bringt, bevor die Schale mit der Lösung unter der Kammer angebracht wird und man außerdem beim Schließen der Kammer sehr vorsichtig vorgeht.

Trotzdem empfiehlt es sich, nach jedem Messzyklus die Waagschale genau zu untersuchen und selbst wenn keine Salzablagerungen auf der Schale wahrnehmbar sind, sollte die Schale nach jeder bis jeder zweiten Messung ausgewechselt werden.

Tabelle 4.1 liefert einen Überblick über alle Messungen, sowie das verwendete Messprotokoll (siehe Abschnitt 3.1) und gibt an, ob die Daten weiterverwendet werden konnten. Falls eine Messung als nicht aussagekräftig eingestuft wurde, findet sich eine Begründung dafür in der Tabelle. Außerdem ist in der Tabelle für jede Messung das verwendete Filtermaterial angegeben.

Ziel war es für jeden Filtertyp mindestens drei verwendbare Messungen aufzuzeichnen. Wie in der Tabelle ersichtlich ist, war dies jedoch nicht immer möglich.

Insgesamt wurden die Daten von 11 Messreihen nicht weiter ausgewertet. Gründe hierfür war Datenverlust durch Stromausfälle, Computerabsturz und Fehlfunktionen der Steuerprogramme, sowie Verunreinigungen, die während der Messung auf der Waagschale entdeckt wurden.

Bei einigen Messungen wurden die Salzurückstände auf der Waagschale erst im Nachhinein registriert. Diese Messungen, die in der Tabelle 4.1 extra gekennzeichnet sind, wurden bei der anschließenden Interpretation der Daten nicht berücksichtigt.

Insgesamt bleiben schlussendlich 21 Messzyklen, die für weitere Berechnungen und Vergleiche herangezogen werden können.

Tabelle 4.1: Überblick über Messungen, verwendete Filtermaterialien und verwendetes Messprotokoll

Filtertyp	Messungsnummer	Verwendetes Messprotokoll	Anmerkung
Quarzfaser	QF1	1	Salz auf Waagschale
	QF2	1	Salz auf Waagschale
	QF3	2	OK
	QF4	2	OK
Glasfaser	GF1	1	Salz auf Waagschale
	GF2	1	Salz auf Waagschale
	GF3	2	OK
	GF4	2	OK
Celluloseester	CE1	2	Salz auf Waagschale
	CE2	2	OK
	CE3	2	OK
	CE4	2	OK
Celluloseacetat	CA1	2	OK
	CA2	2	OK
	CA3	2	OK
Cellulosenitrat	CN1	2	OK
	CN2	2	OK
	CN3	2	OK
Polycarbonat klein	PCK1	1	Salz auf Waagschale
	PCK2	2	OK
	PCK3	2	OK
Polycarbonat groß	PCG1	2	Salz auf Waagschale
	PCG2	2	OK
	PCG3	2	OK
	PCG4	2	OK
Teflon	TP1	1	Salz auf Waagschale
	TP2	1	Salz auf Waagschale
	TP3	1	Salz auf Waagschale
	TP4	1	Salz auf Waagschale
Leermessung	LE1	-	Salz auf Waagschale
	LE2	-	OK
	LE3	-	OK
	LE4	-	OK

## 4.1 Nullpunktmessungen

Von den insgesamt vier Nullpunktmessungen bzw. Leermessungen konnte Messung LE1 sofort ausgeschieden werden, da sich Salz an der Waagschale befand.

Die drei restlichen Messungen wurden zuerst nach einem Schema, das bei der Auswertung der ersten Testmessungen entwickelt wurde, ausgewertet.

Bei den Testmessungen war deutlich sichtbar, dass sich nach einer gewissen Zeit ein Gleichgewichtszustand in der Kammer einstellt und die Messwerte der betrachteten Größen abgesehen von statistischen Schwankungen konstant bleiben (Abbildung 4.1).

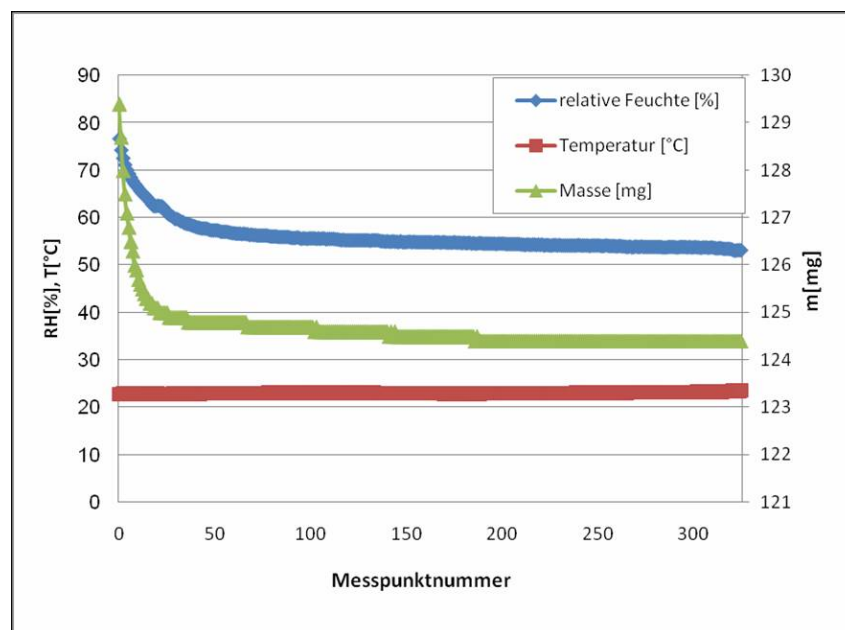


Abbildung 4.1: Testmessung mit Quarzfaserfilter

Um nun eine möglichst hohe Genauigkeit für die einzelnen Massenwerte bei einer relativen Feuchte zu erhalten, erschien der Ansatz Mittelwerte über den "stabilen" Bereich der Kurve zu bilden als recht sinnvoll. Zu beachten ist hierbei, dass nur die Messwerte, bei denen sich bereits ein dynamisches Gleichgewicht in der Kammer eingestellt hat, verwendet werden dürfen. Natürlich liegt die Akklimatisierungszeit der Filter bei dieser Auswertungsmethode nicht bei 24 Stunden, wie eigentlich vorgesehen, jedoch haben weitere Testmessungen ergeben, dass das Verhalten der relativen Feuchte und der Masse temperaturabhängig ist (Abbildung 4.2).

Wenn nun genau gegen Ende der Messung nach dem Ablauf von 24 Stunden, die Temperatur höher ist als durchschnittlich, erhält man ein verfälschtes Messresultat für die Massenwerte. Aus diesem Grund erscheint es als geeignet über einen größeren Zeitraum zu mitteln, auch wenn dadurch die vorgegebene Akklimatisierungszeit von



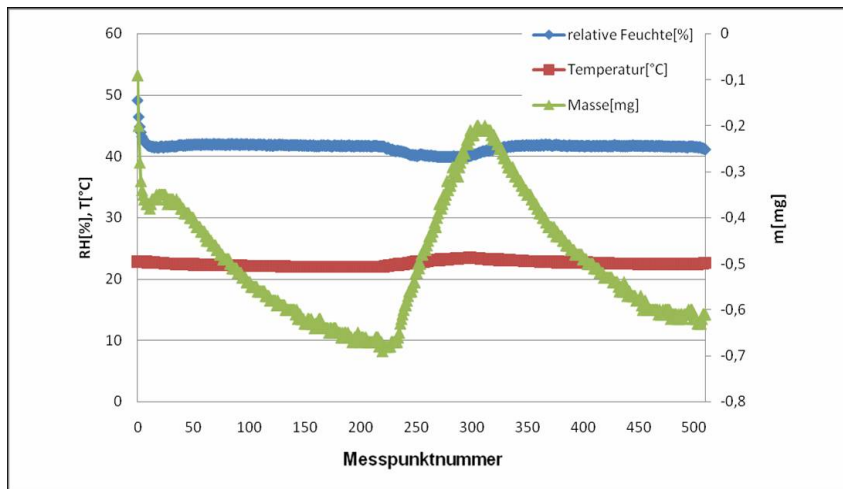


Abbildung 4.2: Nachdem sich die relative Feuchte in der Kammer eingestellt hat, können temperaturbedingte Massenschwankungen auftreten.

24 Stunden nicht eingehalten wird.

Mit den Mittelwerten der einzelnen Messtage, konnte man die Massenzu- und abnahmen zwischen den relativen Feuchtestufen errechnen. Außerdem konnte die Schwankung der Temperaturwerte während des gesamten Messzykluses beobachtet werden.

Für die erste relevante Leermessung (Messung LE2) erhält man mit dieser Methode das in Tabelle 4.2 und Tabelle 4.3 veranschaulichte Ergebnis.

Tabelle 4.2: Ergebnisse der einzelnen Messtage für Leermessung LE2

Messtag	1	2	3	4	5
Mittelwert RH [%]	31	54	89	54	32
Mittelwert T [°C]	22,5	22,5	21	21	20
Mittelwert m [mg]	0,4	0,5	1,1	0,6	0,3

Wenn man nach dem gleichen Schema die nächsten zwei Leermessungen behandelt, erhält man die Ergebnisse aus Tabelle 4.4 und Tabelle 4.5.

Das Ergebnis aus Tabelle 4.5 zeigt eine relativ hohe Massenabnahme was sehr ungewöhnlich scheint. Auch einige Messungen mit Filtern zeigen irreversible Massenabnahmen, obwohl andere Messungen mit den gleichen Materialien irreversible Massenzunahmen zeigen.

Aus diesem Grund musste die Vorgehensweise bei der Auswertung nochmals überdacht werden und die Messergebnisse nochmals auf Fehlerquellen geprüft werden.

Tabelle 4.3: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für Messung LE2 nach Auswertemethode 1

relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
31% - 54%	0,1
54% - 89%	0,6
89% - 54%	-0,5
54% - 32%	-0,3
$\Delta m_i$ [mg]	-0,1

Tabelle 4.4: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für Messung LE3 nach Auswertemethode 1

relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
31% auf 53%	0,2
53% auf 91%	0,7
91% auf 54%	-0,4
54% auf 32%	0,2
$\Delta m_i$ [mg]	0,7

Tabelle 4.5: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für Messung LE4 nach Auswertemethode 1

relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
31% auf 53%	-0,1
53% auf 91%	0,2
91% auf 56%	-1,2
56% auf 31%	-0,4
$\Delta m_i$ [mg]	-1,5

Nachdem einige Messung aufgrund von Salzurückständen aussortiert werden mussten, wurde bei den nächsten Messungen besonders Wert darauf gelegt, Salzurückstände zu vermeiden. Aus diesem Grund wurde alle ein bis zwei Messungen eine neue Waagschale sowie ein neuer Haken für die Waagschale in den Messaufbau eingebaut. Somit kann also eine erhöhte Massenzunahme der Waagschale, aufgrund von Salzurückständen an der Waagschale, ausgeschlossen werden.

Weitere Störeffekte, die in Frage kommen, sind Unregelmäßigkeiten des Messergebnisses aufgrund von Schwankungen der relativen Feuchte, die wiederum temperaturbedingt sind, sowie die temperaturbedingten Schwankungen, die schon bei den Stabilitätsmessungen aufgetreten sind. Auch unterschiedlich lange Messdauern könnten eine Erklärung für weitere Störeffekte sein.

Die Messdauern der einzelnen Teilmessungen von Messung LE3 entsprechen alle relativ genau einem Tag. Bei Messung LE2 ist die letzte Teilmessung deutlich länger, jedoch wurden für die Datenauswertung nur die ersten 300 Werte, was ca. einem Tag entspricht, verwendet. Bei Messung LE4 ist die erste und die fünfte Teilmessung ungefähr doppelt so lang wie die anderen Messungen. Für die fünfte Teilmessung wurde das gleich wie für die fünfte Teilmessung der Messung LE2 gelöst und bei der ersten Teilmessung wurde ein stabiler Teilbereich unter den ersten 300 Werten für die Mittelwertbildung herangezogen. Die unterschiedlichen Messdauern sollten somit keinen Einfluss haben.

Bei näherer Betrachtung der Messdaten, fällt auf, dass die Temperaturschwankungen, die bereits bei der Stabilitätsmessung bemerkt wurden, teilweise wieder auftreten. Da während der Messungen im gleichen Labor auch andere Messungen durchgeführt wurden und daher zeitweise einige Geräte im näheren Umfeld der Feuchteammer betrieben wurden, war tagsüber ein Temperaturanstieg von einigen Grad zu verzeichnen (Abbildung 4.3).

Um zu untersuchen, ob die Massenschwankungen durch den Temperaturanstieg verursacht wurden, wurde eine andere Auswertungsmethode gewählt. Hierbei wurden zuerst alle Temperaturwerte einer Messreihe gesammelt und der Mittelwert gebildet. Im Anschluss wurden nur Messwerte weiterverwendet bei denen der Temperaturwert innerhalb einer Schwankungsbreite von ca. 3% um den Mittelwert lag. Über Temperaturwerte aus diesem Bereich sowie die dazugehörigen Massen- und Feuchtwerte wurde gemittelt und falls in den gewählten Werten, Wertepaare enthalten waren, wo sich die relative Feuchte noch nicht im Gleichgewicht befand, wurden diese Werte aussortiert. Mit dieser Methode erhält man für die Leermessungen LE3 und LE4, die Ergebnisse in Tabelle 4.6 und Tabelle 4.7.

Mit der oben beschriebenen Methode erhält man zwar anderer Werte, die jedoch für Messung LE4 noch immer eine unerklärliche Massenabnahme zeigen.

Aus diesem Grund wurden die Daten der Messreihe LE4 nochmals genauer analysiert. Dabei war auffällig, dass bei manchen Teilmessungen die Abhängigkeit der Masse von der Temperatur deutlich stärker ist, als der Zusammenhang zwischen Masse und relativer Feuchte. (Abbildung 4.4 und Abbildung 4.5). Wenn man den Bereich in dem sich die relative Feuchte einstellt ausklammert, ergibt sich im rest-

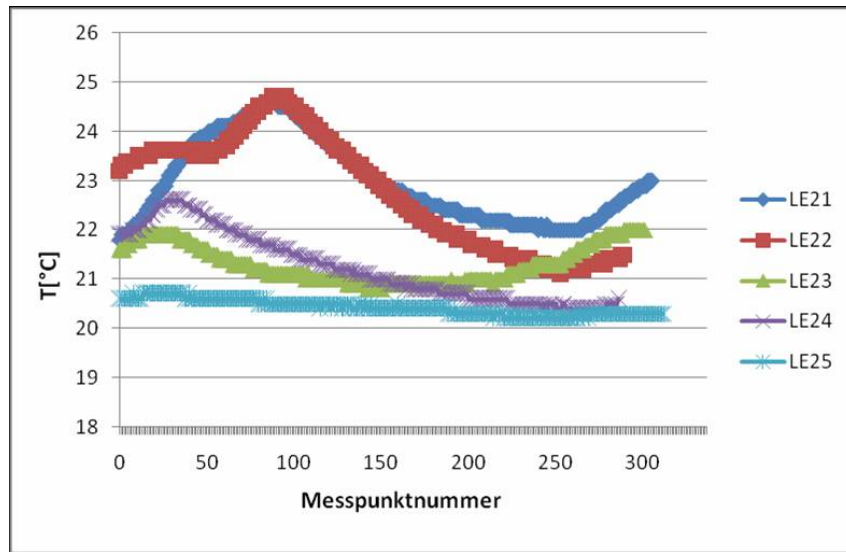


Abbildung 4.3: Temperaturunterschiede während einer Messreihe - LE2

Tabelle 4.6: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für Messung LE3 nach Auswertemethode 2

relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
31% auf 51%	0,3
51% auf 88%	0,7
88% auf 54%	-0,4
54% auf 31%	-01
$\Delta m_i$ [mg]	0,5

Tabelle 4.7: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für Messung LE4 nach Auswertemethode 2

Feuchte	$\Delta m$ [mg]
31% auf 52%	0
52% auf 91%	0,3
91% auf 56%	-1,1
56% auf 31%	-0,4
$\Delta m_i$ [mg]	-1,2

lichen Bereich ein linearer Zusammenhang zwischen Masse und Temperatur und es ist eine deutliche Abnahme der Masse zu beobachten, obwohl die relative Feuchte nur minimal schwankt. In Abbildung 4.5 sieht man, dass nachdem sich eine relative Feuchte von 90% eingestellt hat, die Masse stark fällt, obwohl sich der relative Feuchtwert nicht ändert. Dies erinnert an die Schwankungen, die während der Stabilitätsmessung beobachten wurden, nur sind die Schwankungen nun um einen Faktor zwei größer und somit doch wieder relevant.

Obwohl zwar der Ursprung dieser Schwankungen nicht ganz geklärt ist, verfälschen sie offensichtlich die Ergebnisse und entsprechen nicht einer realen Zu- oder Abnahme des Wägeguts. Aus diesem Grund musste eine Korrekturmöglichkeit, die diese temperaturbedingten Schwankungen korrigiert und dabei die feuchtebedingten Schwankungen nicht bzw. wenig beeinflusst, gefunden werden.

Bei genauerer Untersuchung der Daten der Messreihe LE4, wurde festgestellt, dass bei manchen Teilmessungen ein linearer Zusammenhang zwischen Temperatur und Feuchte besteht und bei anderen nicht. Bei einer Zerlegung der einzelnen Teilmessungen in Unterbereiche, wobei die Bereichsgrenzen so gewählt wurden, dass die Temperaturwerte innerhalb eines Bereichs entweder stetig steigen oder stetig fallen, wurde festgestellt, dass der Zusammenhang zwischen Temperatur und Masse bei einer starken Veränderung der relativen Feuchte nicht oder nur wenig linear ist. In Bereichen wo die relative Feuchte hingegen sehr konstant ist und die Temperatur stark schwankt, können lineare Zusammenhänge zwischen Temperatur und Masse beobachtet werden. Problematisch sind Bereiche wo sowohl die Temperatur als auch die relative Feuchte ansteigt oder abfällt, da in diesen Bereichen nicht zwischen den einzelnen Effekten differenziert werden kann. Aus diesem Grund wurden die Bereiche am Anfang jeder Teilmessung, wo die meisten feuchtebedingten Massenänderungen vermutet werden, nicht nur nach den Temperaturwerten unterteilt, sondern sofern notwendig auch nach starken relativen Feuchteänderungen.

Um nun das Korrekturverfahren besser erläutern zu können, wird es hier anhand von Messung LE4.2 demonstriert (Abbildung 4.6).

Wie bereits erwähnt, beginnt man damit, die Messung in einzelne Bereiche mit stetig abfallenden bzw. ansteigenden Temperaturwerten zu unterteilen. Die Schwankungen der Temperaturwerte sind in dieser Darstellung nicht sehr deutlich sichtbar, aber bei Betrachtung der einzelnen Werte sieht man, dass bis Messpunktnummer 115, die Temperaturwerte stetig ansteigen und nach Messpunktnummer 115 wieder stetig fallen. Die Messreihe wird somit bei Messpunktnummer 115 in zwei Bereiche geteilt und im Anschluss wird jeder Anfangs- und Endwert eines Bereiches sowie der letzte aufgezeichnete Wert der vorherigen Teilmessung am Tag davor notiert (Tabelle 4.8).

Anschließend wird die Massendifferenz zwischen diesen Punkten berechnet und überprüft, ob in den Bereichen die Masse linear von der Temperatur abhängt oder nicht. Als linearer Zusammenhang werden alle Bereiche mit Bestimmtheitsmaß  $R^2$  größer oder gleich 0,8 gewertet. Diese Bereiche werden vernachlässigt, da dort die Massenschwankungen stärker durch die Schwankungen der Temperatur beeinflusst

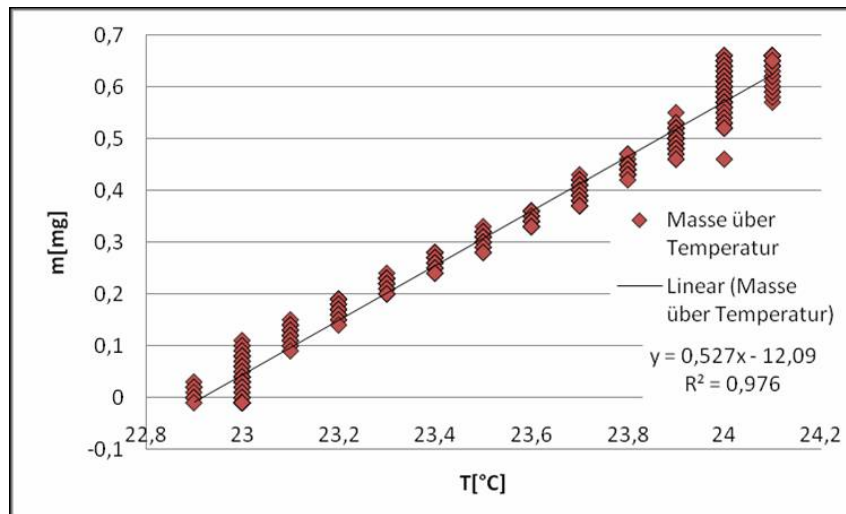


Abbildung 4.4: Bei der Teilmessung LE4.3 ist ein linearer Zusammenhang zwischen Masse und Temperatur zu beobachten.

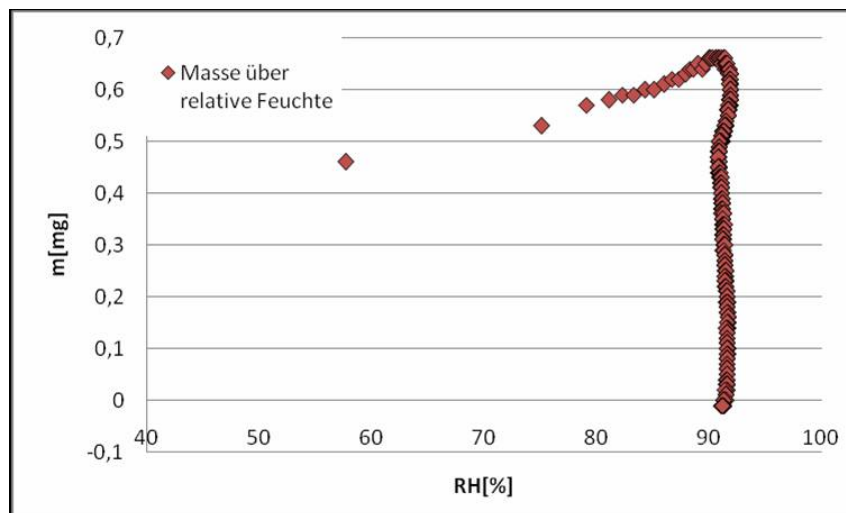


Abbildung 4.5: Die Masse scheint bei der Teilmessung LE4.3 nur bis zur Einstellung eines konstanten relativen Feuchtewerts von der relativen Feuchte abhängig zu sein. Danach nimmt die Masse stark ab, obwohl sich bei der relativen Feuchte keine signifikante Änderung zeigt.

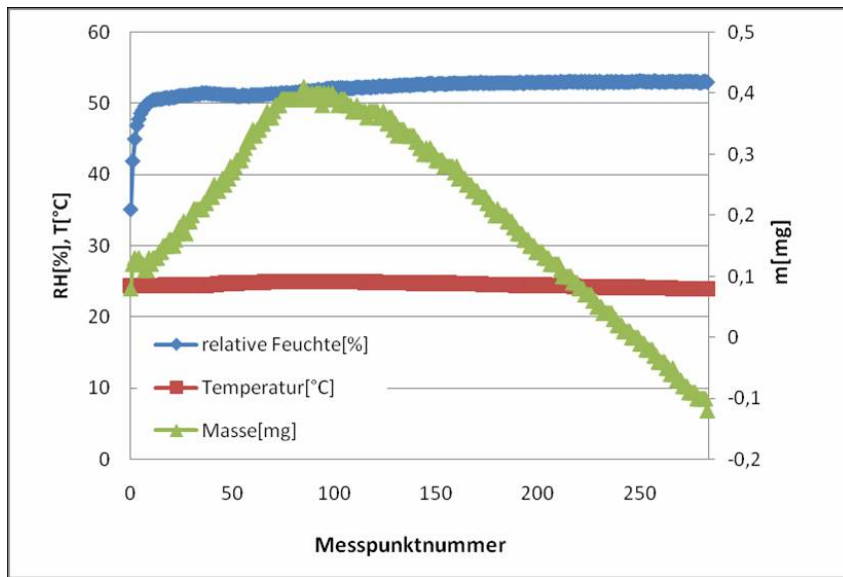


Abbildung 4.6: Bei Teilmessung LE4.2 kann Massenabnahme beobachtet werden, obwohl keine signifikante relative Feuchteabnahme zu sehen ist.

Tabelle 4.8: LE4.2 - Unterteilung der Messung in Bereiche mit stetig steigender oder fallender Temperatur

Wertebezeichnung	RH[%]	T[°C]	m[mg]
LE4.1 Ende	30,6	24,4	0,0
LE4.2 Anfang	35,1	24,4	0,1
LE4.2 Messpunkt 115	52,2	25	0,4
LE4.2 Ende	53	24	-0,1

werden, als durch die Schwankungen der relativen Feuchte. Bereiche in denen die Linearität des Zusammenhangs zwischen Masse und Temperatur geringer ist, werden für die Auswertung herangezogen (Tabelle 4.9).

Für den kurzen Zeitraum zwischen Ende einer Teilmessung und Beginn einer neuen Teilmessung, lässt sich nicht wirklich eine Aussage bezüglich des Zusammenhangs zwischen Masse und Temperatur machen, da man nur zwei Wertepaare hat. Da der Zeitraum im Vergleich zur Messdauer kurz ist und sich die relative Feuchte stark ändert, werden diese Massendifferenzen immer als relevant eingestuft.

Mit diesem Verfahren verschwinden die unerklärlichen irreversiblen Massenzunahmen, die bei Messungen mit Filtern und bei Messung LE4 aufgetreten sind. In Tabelle 4.10 sind nochmals alle Ergebnisse der korrigierten Leermessungen zusammengefasst.

Tabelle 4.9: Für die Messung LE4.2 wird die Massendifferenz zwischen den ausgewählten Messpunkten gebildet und die Linearität in den Messintervallen überprüft.

Wertebezeichnung	$\Delta m$ [mg]	$R^2$	$\Delta m$
LE4.1 Ende - LE4.2 Anfang	+0,1	-	gewertet
LE4.2 Anfang - LE4.2 Messpunkt 115	+0,3	0,964	nicht gewertet
LE4.2 Messpunkt 115 - LE4.2 Ende	-0,5	0,988	nicht gewertet
Summe	0,1		

Tabelle 4.10 zeigt deutlich, dass die Ergebnisse starken Schwankungen unterliegen, da durch die temperaturbedingten Schwankungen des Massenwerts Unsicherheiten entstehen, die auch durch das Korrekturverfahren nicht vollständig beseitigt werden können. Der Mittelwert von  $\Delta m_i$  liegt für die Leermessungen bei 0,1mg und die Standardabweichung bei 0,3mg. Man kann davon ausgehen, dass Ergebnisse für  $\Delta m_i$ , die kleiner als 0,3mg sind, nicht als signifikant eingestuft werden können.



Tabelle 4.10: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Leermessung nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
LE2	30% auf 53%	0,1
	53% auf 89%	0,6
	89% auf 55%	-0,2
	55% auf 33%	-0,1
	$\Delta m_i$ [mg]	0,4
LE3	31% auf 53%	0,1
	53% auf 89%	0,2
	89% auf 54%	-0,3
	54% auf 31%	-0,1
	$\Delta m_i$ [mg]	-0,1
LE4	30% auf 52%	0,1
	52% auf 91%	0,4
	91% auf 56%	-0,7
	56% auf 32%	-0,1
	$\Delta m_i$ [mg]	-0,3

## 4.2 Vermessene Filtermaterialien und ihre Eigenschaften

In Tabelle 4.11 findet man eine Auflistung der verwendeten Filtermaterialien und deren wichtigsten Eigenschaften.

Die ausgewerteten Daten, die in den nächsten Unterkapiteln nach Filtertypen sortiert aufgelistet sind, wurden nach dem Auswerteschema, mit dem auch die Leermessungen ausgewertet wurden, berechnet. Die Unsicherheit der Ergebnisse wird im Anschluss diskutiert.

Tabelle 4.11: Verwendete Filtermaterialien und ihre Eigenschaften - FF=Faserfilter, KMF=Kappilarmembranfilter, PMF=Poröser Membranfilter

Material	Hersteller	Bestellnummer	Filterart	Durchmesser
Porengröße				
Quarzfaser	PALL Life Sciences	Tissuquartz2500QAT-UP	FF	47mm
-				
Glasfaser	Whatman	1823-055	FF	55mm
-				
Polycarbonat(klein)	GE Water & Process Technologies	K02CP02500	KMF	25mm
0,2 $\mu$ m				
Polycarbonat(groß)	Nuclepore	111114	KMF	47mm
8,0 $\mu$ m				
Celluloseester	GN 4 Metrical	23380-U	PMF	47mm
0,8 $\mu$ m				
Celluloseacetat	Sartorius Stedim Biotech	11107-47-N	PMF	47mm
0,2 $\mu$ m				
Cellulosenitrat	Whatman	7181-004	PMF	47mm
0,1 $\mu$ m				
Teflon	-	-	PMF	47mm
0,5 $\mu$ m				

### 4.2.1 Quarzfaserfilter

Quarzfaserfilter haben aufgrund ihrer thermischen Beständigkeit, sowie durch das Fehlen organischer Inhaltsstoffe ein breites Einsatzgebiet und werden daher für verschiedenste Studien eingesetzt. Aus diesem Grund ist es von großem Interesse welche Auswirkungen eine Veränderung der Akklimatisierungsbedingungen auf Quarzfaserfilter hat. Von den zwei verwertbaren Messungen, die für Quarzfaserfilter durchgeführt wurden, zeigt nur Messung QF4 eine signifikante irreversible Massenzunahme.

Tabelle 4.12: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Quarzfasermessungen nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
QF3	31% auf 51%	0,3
	51% auf 88%	0,6
	88% auf 53%	-0,9
	53% auf 32%	-0,3
	$\Delta m_i$ [mg]	-0,3
QF4	35% auf 53%	0,6
	53% auf 88%	1,2
	88% auf 57%	-1,1
	57% auf 37%	-0,1
	$\Delta m_i$ [mg]	0,6

### 4.2.2 Glasfaserfilter

Demuyneck [10] hat bei einer experimentellen Untersuchung von Glasfaser- und Cellulosefiltern so gut wie keine irreversible Massenzunahme an Glasfaserfiltern festgestellt. Die hier vorliegenden Messungen scheinen dies nicht zu bestätigen, was nun eventuell von der herabgesetzten relativen Feuchte verursacht sein könnte, da Demuyneck [10] bei ca. 55% relativer Feuchte arbeitete.

Andererseits wurden die von Demuyneck [10] durchgeführten Messungen nicht im Labor durchgeführt, was die Anzahl der variablen Parameter, die die Messung beeinflussen können, stark steigert. Rückstände von atmosphärischen Aerosolen auf dem Filter könnten zum Beispiel die Wasseraufnahmen des Filters beeinträchtigen. Es ist somit fraglich, ob die Werte von Demuyneck für einen Vergleich mit den hier vorliegenden Werten herangezogen werden können.

Tabelle 4.13: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Glasfasermessungen nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
GF3	38% auf 56%	0,2
	56% auf 88%	1,1
	88% auf 61%	-0,4
	61% auf 39%	-0,3
	$\Delta m_i$ [mg]	0,6
GF4	45% auf 62%	0,1
	62% auf 88%	0,7
	88% auf 65%	-0,4
	65% auf 44%	-0,0
	$\Delta m_i$ [mg]	0,4

### 4.2.3 Polycarbonatfilter(klein)

Bei den Polycarbonatfiltern(klein) der Firma GE Water & Process Technologies würde man aufgrund der kleinen Fläche im Vergleich zu den Polycarbonatfiltern(groß) der Firma Nuclepore eine eher geringe Massenzunahme erwarten. Auffällig erscheint, dass während des Absinkens der relativen Feuchte von 50% auf 30% keine Massenabnahme bei den Polycarbonatfiltern(klein) verzeichnet werden kann.

Tabelle 4.14: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Polycarbonatmessungen(klein) nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
PCK2	32% auf 52%	0,1
	52% auf 89%	0,3
	89% auf 56%	-0,2
	56% auf 35%	0
	$\Delta m_i$ [mg]	0,2
PCK3	35% auf 53%	0,5
	53% auf 89%	1,2
	89% auf 56%	-0,9
	56% auf 35%	0
	$\Delta m_i$ [mg]	0,8

Eine Begründung hierfür könnte sein, dass das an den Filter angelagerte Wasser

in die relativ kleinen Poren ( $0,2\mu\text{m}$ ) des Filters eingedrungen ist und von dort weg nur sehr langsam bzw. so gut wie gar nicht verdampft.

#### 4.2.4 Polycarbonatfilter(groß)

Wie in Tabelle 4.15 schön zu sehen ist, gibt es bei den Polycarbonatfiltern mit 47mm Durchmesser keine signifikanten irreversiblen Massenänderungen am Ende der Messzyklen. Die Wasseraufnahme des Filters ist auch bei allen Messreihen relativ gering, woraus sich schließen lässt, dass das Filtermaterial nicht sehr hygroskopisch ist.

Tabelle 4.15: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Polycarbonatmessungen(groß) nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m[\text{mg}]$
PCG2	31% auf 50%	0,1
	50% auf 90%	0,3
	90% auf 54%	-0,7
	54% auf 33%	0
	$\Delta m_i[\text{mg}]$	-0,3
PCG3	34% auf 53%	0,4
	53% auf 87%	0,3
	87% auf 56%	-0,6
	56% auf 36%	-0,1
	$\Delta m_i[\text{mg}]$	0
PCG4	37% auf 56%	0,1
	56% auf 88%	0,2
	88% auf 58%	0,1
	58% auf 38%	-0,1
	$\Delta m_i[\text{mg}]$	0,3

#### 4.2.5 Celluloseesterfilter

Celluloseester gehört genau wie Celluloseacetat zu den eher hygroskopischen Stoffen, was sich durch eine höhere Wasserzunahme als bei nicht hygroskopischen Materialien wie zum Beispiel Polycarbonatfilter bemerkbar macht. Die Ergebnisse der Messungen mit Celluloseesterfiltern findet man in Tabelle 4.16.

Tabelle 4.16: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Celluloseestermessungen nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
CE2	31% auf 53%	0,4
	53% auf 90%	1,9
	90% auf 54%	-1,5
	54% auf 32%	-0,6
	$\Delta m_i$ [mg]	0,2
CE3	35% auf 53%	0,5
	53% auf 85%	1,9
	85% auf 56%	-1,0
	56% auf 36%	-0,7
	$\Delta m_i$ [mg]	0,7
CE4	35% auf 52%	0,2
	52% auf 87%	1,5
	87% auf 57%	-1,0
	57% auf 36%	-0,3
	$\Delta m_i$ [mg]	0,4

#### 4.2.6 Celluloseacetatfilter

Bei Celluloseacetatfiltern kann trotz der großen Ungenauigkeit, die durch die Temperaturschwankungen bedingt ist, auf jeden Fall von einer irreversiblen Massenzunahme gesprochen werden. Um genaue Werte für die irreversibel aufgenommene Masse zu erhalten, müssten nochmals Messungen mit höherer Sensitivität gemacht werden. Wie Tabelle 4.17 zeigt, ist es aber sehr wahrscheinlich, dass man mit einer Massenzunahme von 1mg bis 2mg rechnen kann.

#### 4.2.7 Cellulosenitratfilter

Cellulosenitratfilter nehmen zwar im Laufe der Messungen ähnlich große Mengen Wasser auf, wie Celluloseesterfilter, jedoch geben sie das meiste davon beim Absenken der relativen Feuchte wieder ab. Von den drei mit Cellulosenitrat durchgeführten Messungen, ist nur bei einer Messung eine signifikante irreversible Massenzunahme festzustellen (Tabelle 4.18).

Tabelle 4.17: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Celluloseacetatmessungen nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
CA1	38% auf 57%	0,8
	57% auf 90%	4,1
	90% auf 62%	-1,4
	62% auf 39%	-0,5
	$\Delta m_i$ [mg]	3,0
CA2	39% auf 58%	0,9
	58% auf 90%	4
	90% auf 62%	-2
	62% auf 40%	-0,8
	$\Delta m_i$ [mg]	2,1
CA3	39% auf 58%	1,1
	58% auf 88%	3,6
	88% auf 62%	-3
	62% auf 42%	-0,2
	$\Delta m_i$ [mg]	1,5

#### 4.2.8 Teflonfilter

Die Teflonfilter, die mit einem Polypropylenbindematerial versehen waren, konnten leider nicht mehr eindeutig einem Hersteller zugeordnet werden, da sie aus Altbeständen stammten und nicht mehr in der Originalverpackung aufbewahrt wurden. Weiters besteht der Verdacht, dass sich während aller Messungen, die mit Teflonfiltern gemacht wurden, Salzurückstände auf der Waagschale befanden. Da insgesamt nur vier Filter dieser Art vorhanden waren, gab es keine Möglichkeit noch weitere Messungen durchzuführen. Aus diesem Grund werden die gemessenen Werte auch nicht für weitere Vergleiche herangezogen.

Tabelle 4.18: Massenänderungen während des gesamten Messzykluses und irreversible Massenzunahme bzw. Massenabnahme für alle Cellulosenitratmessungen nach Auswertemethode 3

Messungsnummer	relative Feuchte	$\Delta m$ [mg]
CN1	41% auf 59%	0,1
	59% auf 89%	1,5
	89% auf 63%	-1,1
	63% auf 41%	-0,3
	$\Delta m_i$ [mg]	0,2
CN2	41% auf 60%	0,6
	60% auf 90%	1,5
	90% auf 64%	-1,2
	64% auf 42%	-1,0
	$\Delta m_i$ [mg]	-0,1
CN3	44% auf 62%	0,3
	62% auf 86%	2,0
	86% auf 65%	-1,3
	65% auf 46%	-0,4
	$\Delta m_i$ [mg]	0,6

### 4.3 Vergleich der Ergebnisse von verschiedenen Filtermaterialien

In Tabelle 4.19 sind nochmals alle Messergebnisse aufgelistet und es wurde zudem über die errechneten irreversiblen Massenzunahmen der Mittelwert gebildet. Dieser Wert hat zwar aufgrund der sehr großen Unsicherheit keine wirkliche quantitative Aussage, aber er ist zumindest ein qualitatives Maß, ob mit irreversibler Massenzunahme zu rechnen ist oder nicht. Bei Mittelwerten die kleiner oder gleich 0,3mg sind, kann man nicht von einer signifikanten irreversiblen Massenzunahme sprechen, da sie innerhalb der Schwankungsbreite der Leermessungen liegen.

In Tabelle 4.20 ist für die einzelnen Messungen nach Auswertemethode 3 die prozentuelle irreversible Massenzunahme zum Massenwert bei der zweiten Teilmessung angegeben.

Mit den im Zuge dieser Arbeit durchgeführten Messungen kann festgestellt werden, dass bei Celluloseacetat-, Celluloseester-, Polycarbonat-(Porengröße = 0,2 $\mu$ m) und Glasfaserfiltern eine irreversible Massenzunahme erfolgt, wenn Filtermaterialien relativen Feuchten von bis zu 90% ausgesetzt sind und anschließend bei 30% relativer Feuchte vermessen werden.

Die prozentuelle irreversible Massenzunahme der Filtergesamtmasse fällt am höchsten für Polycarbonatfilter der Firma GE Water & Process Technologies aus.



Tabelle 4.19: Irreversible Massenzunahme in mg für alle Messungen nach Auswertemethode 3

Filtermaterial	Messung1	Messung2	Messung3	Mittelwert
Leermessung	0,6	-0,1	-0,3	0,07
Quarzfaser	-0,3	0,6	-	0,15
Glasfaser	0,6	0,4	-	0,50
Polyc. klein	0,2	0,8	-	0,50
Ployc. groß	-0,3	0	0,3	0
Celluloseester	0,2	0,7	0,4	0,43
Celluloseacetat	3	2,1	1,5	2,20
Cellulosenitrat	0,2	-0,1	0,6	0,23

Bei der hohen Unsicherheit der Ergebnisse, ist aber auch dieser Wert mit Vorsicht zu genießen, da bei einem kleinen Massengesamtwert schon geringe Schwankungen der irreversibel aufgenommenen Masse zu großen Schwankungen des prozentuellen Werts der irreversibel zugenommenen Masse, führen können. Ansonsten zeigt Celluloseacetat einen relativ hohen Wert für die prozentuelle irreversible Massenzunahme, der ca. drei mal so hoch ist, wie der für Celluloseester.

Tabelle 4.20: Prozentuelle irreversible Massenzunahme für alle Messungen nach Auswertemethode 3

Filtermaterial	m [mg] bei RH=50%	Mittelwert $\Delta m_i$ [mg]	Mittelwert $\Delta m_i$ [%]
Quarzfaser	130	0,15	0,12
Glasfaser	123	0,5	0,41
Polyc. klein	4	0,5	12,5
Ployc. groß	17	0	0
Celluloseester	77	0,7	0,91
Celluloseacetat	80	2,20	2,75
Cellulosenitrat	90	0,23	0,25

Bei Quarzfaser-, Polycarbonat-(Porengröße= $8\mu\text{m}$ ) und Cellulosenitratfiltern konnten mit dem hier verwendeten Messaufbau keine signifikanten irreversible Massenzunahmen bzw. prozentuelle irreversible Massenzunahmen beobachtet werden.

## Kapitel 5

# Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

### 5.1 Zusammenfassung und Vergleich mit Aufgabenstellung

Die im Zuge dieser Arbeit durchgeführten Messungen zeigen, dass bei einer Reduktion des vorgeschriebenen relativen Feuchtewert von 50% auf 30% irreversible Massenzunahme von Filtern, die für mindesten 24 Stunden einer relativen Feuchte von um die 90% ausgesetzt waren, bei einigen Filtermaterialien auftreten kann.

Mit dem hier beschriebenen Versuchsaufbau und der damit möglichen Messgenauigkeit, konnte bei Celluloseester-, Celluloseacetat- und Glasfaserfiltern eine irreversible Massenzunahme festgestellt werden. Bei Quarzfaserfiltern und Cellulosenitratfiltern hingegen konnte keine signifikante irreversible Massenzunahme festgestellt werden. Versuche, die mit Polycarbonatfiltern mit verschiedenen Porengrößen durchgeführt wurden, zeigen, dass bei kleineren Poren eine höhere irreversible Massenzunahme auftritt.

Nach den Ergebnissen der hier vorliegenden Arbeit ist eine Absenkung des vorgeschriebenen relativen Feuchtewerts für gravimetrische Bestimmungen nicht ganz unproblematisch, da bei einigen Filtermaterialien signifikante irreversible Massenaufnahme erfolgt und die Genauigkeit der Aerosolmassenbestimmung somit beeinträchtigt werden würde. Für Quarzfaserfilter, die für atmosphärische Messungen oft zum Einsatz kommen, konnte zwar keine signifikante irreversible Massenzunahme beobachtet werden, aber da die Genauigkeit der durchgeführten Messungen bei ca. 0,5mg liegt, ist es nicht auszuschließen, dass auch hier ein wenn auch kleiner Effekt auftritt.

Für die Filtermaterialien, die keine irreversible Massenzunahme zeigen, wäre es sicher sinnvoll weitere Experimente mit einem verbesserten Aufbau und somit einer verbesserten Genauigkeit durchzuführen, da die Effekte eventuell zu klein sind, um mit dem hier beschriebenen Messaufbau registriert zu werden.

Einige Vorschläge zur Verbesserung des Messaufbaus finden sich im nächsten Kapitel.

Mit den hier vorliegenden Messdaten kann man keine Aussage bezüglich der Länge der Akklimatisierungsdauer treffen. Dazu wären noch einige Langzeitmessungen, bei denen ein Filter mehrere Tage bei einer relativen Feuchte von 30% beobachtet wird, nachdem er zuerst einer relativen Feuchte von 90% ausgesetzt war, notwendig. Da der erste Versuch einer solchen Messung aufgrund von Kontamination fehl schlug, blieb leider keine Zeit mehr das Experiment zu wiederholen.

## 5.2 Verbesserungsmöglichkeiten des Messaufbaus

Eine Möglichkeit, um die Genauigkeit des Messaufbaus erheblich zu verbessern, ist eine Temperaturregulierung zu integrieren. Bevor dies in Angriff genommen wird, sollte jedoch die Waage überprüft werden, da die Ursache für die temperaturbedingten Schwankungen nicht geklärt ist. Bei den Arbeiten [7], [25], [26], [27], die mit dem gleichen Aufbau durchgeführt wurden, traten diese Schwankungen nicht in dieser Form auf. Vielleicht war bei den bisherigen Arbeiten die Temperatur im Labor konstanter, da solange keine anderen Geräte im Raum laufen die Temperatur relativ konstant bleibt.

Falls die Kammer auch weiterhin für Langzeitmessungen verwendet werden sollte, wäre vielleicht auch eine höhere Kammer sinnvoll, da dies das Auftreten von Kontamination der Waagschale durch Salzwasserspritzer verringern würde. Natürlich wäre die Dauer bis zur Einstellung eines thermischen Gleichgewichts für eine größere Kammer länger, was für Messdauern von 24 Stunden oder mehr allerdings kein Problem darstellen würde.

# Literaturverzeichnis

- [1] R. Hitzenberger et al.: Intercomparison of Methods to Measure the Mass Concentration of the Atmospheric Aerosol During INTERCOMP2000 - Influence of Instrumentation and Size Cuts, *Atmospheric Environment* 38, pp.6467-6476, 2004
  
- [2] K. Koistinen, A. Kousa, V. Tenhola, O. Hänninen, M.J. Jantunen, L. Oglesby, N. Kuenzli, L. Georgoulis: Fine Particle(PM<sub>2,5</sub>) Measurement Methodology, Quality Assurance Procedures and Pilot Results of EXPOLIS Study, *Air & Waste Management Association* 49, pp. 1212-1220, 1999
  
- [3] D. W. Dockery, A. Pope, X. Xu, J. D. Spengler, J. H. Ware, M. E. Fay, B. G. Ferris, F. E. Speizer: An Association between Air Pollution and Mortality in Six U.S. Cities, *The New England Journal of Medicine* 329, pp. 1753-1759, 1993
  
- [4] M. Jantunen, O. Hänninen, K. Koistinen, J.H. Hshim: Fine PM Measurements: Personal and Indoor Air Monitoring, *Chemosphere* 49, pp. 993-1007, 2002
  
- [5] CEN(Comité Européen de Normalisation): EN12341:1999/Air Quality - Determination of the PM<sub>10</sub> Fraction of Suspended Particulate Matter - Reference Method and Field Test Procedure to Demonstrate Reference Equivalence of Measurement Methods, 1999
  
- [6] CEN(Comité Européen de Normalisation): EN14907:2005/Ambient Air Quality - Standard Gravimetric Measurement Method for the Determination of the PM<sub>2,5</sub> Mass Fraction of Suspended Particulate Matter, 2005
  
- [7] R. Hitzenberger, A. Berner, U. Dusek, R. Alabashi : Humidity-Dependent Growth of Size-Segregated Aerosol Samples, *Aerosol Science and Technology* 27,

pp.116-130, 1997

- [8] B. Svenningsson, H.C. Hansson, A. Wiedensohler, K. Noone, J. Ogren, A. Hallberg, R. Colvile: Hygroscopic Growth of Aerosol Particles and its Influence on Nucleation Scavenging in Cloud: Experimental Results from Kleiner Feldberg, *Journal of Atmospheric Chemistry* 19, pp. 129-152, 2004
  
- [9] M.Z. Jacobson: Numerical Techniques to Solve Condensational and Dissolutional Growth Equations when Growth is Coupled to Reversible Reactions, *Aerosol Science and Technology* 27:4, pp. 491-498, 1997
  
- [10] M. Demuyneck: Determination of Irreversible Absorption of Water by Cellulose Filters, *Atmospheric Environment* Vol.9, pp. 523-528, 1975
  
- [11] O. Hänninen, A. Kousa, J. Keski-Karhu, M.J. Jantunen: Quantitative Analysis of Environmental Factors in Differential Weighing of Blank Teflon Filters, *Air & Waste Management Association* 52, pp. 134-139, 2002
  
- [12] W. Hinds: *Aerosol Technology - Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles*, 1999
  
- [13] C.E. Mortimer und U. Müller: *Chemie*, 9. Auflage, 2007
  
- [14] K. Willeke und P.A. Baron: *Aerosol Measurement - Principles, Techniques and Applications*, 1994
  
- [15] K.R. Spurny: *The Investigation of the Filtration Process of Non Active and Radioactive Aerosols by Means of Fibrous and Membrane Filters*, 1970
  
- [16] K.R. Spurny: *Advances in Aerosol Filtration*, 1998
  
- [17] C.N. Davies: *Air Filtration*, Academic Press, London, 1973
  
- [18] S.K. Friedlander: Mass and Heat Transfer to Single Spheres and Cylinders at Low Reynolds Numbers, *A.I.C.H.E.J.* 3, pp. 43-48. 1957

- [19] G.L. Natanson: Proc.Acad.Sci. USSR. Phy.Chem.Cec., 1957
- [20] K.W. Lee und B.Y.H. Liu: Theoretical Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters, Aerosol Science & Technology, pp. 35-46, 1982
- [21] I.B. Stechkina, A.A. Kirsch, N.A. Fuchs: Studies in Fibrous Aerosol Filters, IV: Calculation of Aerosol Deposition in Model Filters in the Range of Maximum Penetration, Ann. Occup. Hyg. 12, pp. 1-8, 1969
- [22] R.C. Brown: Air Filtration: An Integrated Approach to the Theory and Applications of Fibrous Filters, Peragamon, Oxford, U.K., 1993
- [23] K.L. Rubow: Submicrometer Aerosol Filtration Characteristics of Membrane Filters, Ph.D. Thesis, University of Minnesota, Minneapolis, Minnesota, 1981
- [24] J. Swanson und D. Kittelson: A Method to Measure Static Charge on a Filter Used for Gravimetric Analysis, Aerosol Science and Technology 42, pp. 714-721, 2008
- [25] K. Lehtinen, M. Kulmala, P. Ctyroky, T. Futschek, R. Hitzenberger: Effect of Electrolyte Diffusion on the Growth of NaCl Particles by Water Vapour Condensation, Journal of Physical Chemistry 107, pp.346-250, 2003
- [26] K. Drobesh: Diplomarbeit - Laboruntersuchung zum Feuchtwachstum anorganischer und organischer Aerosolkomponenten, 2000
- [27] T. Futschek: Diplomarbeit - Dynamisches Feuchtwachstum von organischen Aerosolsubstanzen, 2001
- [28] R.D.H. Low: A Theoretical Study of Nineteen Condensation Nuclei, Journal de Recherches Atmosph. 4, 1969
- [29] [http://de.wikipedia.org/wiki/Smog-Katastrophe\\_in\\_London\\_1952](http://de.wikipedia.org/wiki/Smog-Katastrophe_in_London_1952), 15.08.09
- [30] <http://de.wikipedia.org/wiki/Luftfeuchtigkeit>, 01.08.09

[31] [http://www.umweltbundesamt.at/umweltschutz/luft/luftguete\\_aktuell/grenzwerte/](http://www.umweltbundesamt.at/umweltschutz/luft/luftguete_aktuell/grenzwerte/)  
, 14.09.09

# Tabellenverzeichnis

3.1	Kalibrationstabelle nach Greenspan . . . . .	44
4.1	Überblick über Messungen, verwendete Filtermaterialien und verwendetes Messprotokoll . . . . .	47
4.2	Ergebnisse der einzelnen Messtage für Leermessung LE2 . . . . .	49
4.3	Ergebnisse Messung LE2 nach Auswertemethode 1 . . . . .	50
4.4	Ergebnisse Messung LE3 nach Auswertemethode 1 . . . . .	50
4.5	Ergebnisse Messung LE4 nach Auswertemethode 1 . . . . .	50
4.6	Ergebnisse für Leermessung LE3 nach Auswertemethode 2 . . . . .	52
4.7	Ergebnisse für Leermessungen LE4 nach Auswertemethode 2 . . . . .	52
4.8	LE4.2 - Unterteilung der Messung in Bereiche . . . . .	55
4.9	LE4.2 - Bildung der Massendifferenz und Überprüfung der Linearität . . . . .	56
4.10	Ergebnisse für Leermessungen nach Auswertemethode 3 . . . . .	57
4.11	Verwendete Filtermaterialien und ihre Eigenschaften . . . . .	58
4.12	Quarzfaserfilter nach Auswertemethode 3 . . . . .	59
4.13	Glasfaserfilter nach Auswertemethode 3 . . . . .	60
4.14	Polycarbonatfilter(klein) nach Auswertemethode 3 . . . . .	60
4.15	Polycarbonatfilter(groß) nach Auswertemethode 3 . . . . .	61
4.16	Celluloseesterfilter nach Auswertemethode 3 . . . . .	62
4.17	Celluloseacetatfilter nach Auswertemethode 3 . . . . .	63
4.18	Cellulosenitratfilter nach Auswertemethode 3 . . . . .	64
4.19	Irreversible Massenzunahme in mg . . . . .	65
4.20	Prozentuelle irreversible Massenzunahme . . . . .	65



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmenge von Wasserdampf in Luft [30] . . . . .	6
2.2	negative Abweichung einer realen Lösung vom Raoult'schen Gesetz [13]	11
2.3	positive Abweichung einer realen Lösung vom Raoult'schen Gesetz [13]	12
2.4	Skizze zur Definition der Abscheideeffizienz an einer Faser [14] . . .	18
2.5	Abscheidung durch Brownsche Diffusion an einer einzelnen Faser [12]	20
2.6	Abscheidung durch Interzeption an einer einzelnen Faser [12] . . . .	21
2.7	Abscheidung durch Impaktion an einer einzelnen Faser [12] . . . . .	22
2.8	Effizienz in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers [14] . . . . .	23
2.9	Abscheidemechanismen an einer einzelnen Filterfaser[16] . . . . .	26
2.10	Verschiedene Abscheidemechanismen kommen in verschiedenen Partikelgrößenbereichen stärker zu tragen. . . . .	26
2.11	Abscheideeffizienz bei verschiedenen Anströmgeschwindigkeiten . . .	27
2.12	Elektronen Mikroskop Aufnahme - Faserfilter (4150fache Vergrößerung) [12] . . . . .	28
2.13	Elektronen Mikroskop Aufnahme - Faserfilter (800fache Vergrößerung) [12] . . . . .	29
2.14	Elektronen Mikroskop Aufnahme - poröser Membranfilter (4150fache Vergrößerung) [12] . . . . .	30
2.15	Elektronen Mikroskop Aufnahme - poröser Membranfilter (800fache Vergrößerung) [12] . . . . .	30
2.16	Elektronen Mikroskop Aufnahme - Kapillarenmembranfilter (4150fache Vergrößerung) [12] . . . . .	31
2.17	Elektronen Mikroskop Aufnahme - Kapillarenmembranfilter (800fache Vergrößerung) [12] . . . . .	31
3.1	Messprotokoll 1 - Glasfaserfilter . . . . .	38
3.2	Relative Feuchte in Abhängigkeit von gelöster Menge Magnesiumchlorid [28] . . . . .	39
3.3	Schematische Aufbau der verwendeten Feuchtekammer . . . . .	41
4.1	Testmessung mit Quarzfaserfilter . . . . .	48
4.2	Testmessung mit Teflonfilter . . . . .	49
4.3	Temperaturunterschiede während einer Messreihe - LE2 . . . . .	52

4.4	Masse in Abhängigkeit der Temperatur - LE4.3 . . . . .	54
4.5	Masse in Abhängigkeit der relativen Feuchte - LE4.3 . . . . .	54
4.6	LE4.2 - Massenabnahme unabhängig von Feuchteabnahme . . . . .	55

# Danksagungen

Mein Dank für die Unterstützung beim Erstellen dieser Diplomarbeit gilt an erster Stelle Ao. Univ.-Prof. Dr. Regina Hitzenberger für die umfassende Betreuung während des Erstellens der Diplomarbeit. Mit Hilfe ihrer guten Ratschläge war es mir möglich sehr viele Erfahrungen im eigenständigen experimentellen Arbeiten zu sammeln, die mir für meine Zukunft sicher noch nützlich sein werden.

Weiters möchte ich Heidi Bauer vom Institut für Chemische Technologien und Analytik der TU Wien, für das zur Verfügung stellen einiger Filtermaterialien, danken.

Meiner Laborkollegin Julia Burkart möchte ich für die Möglichkeit zum gedanklichen Austausch und für nützliche Tipps danken und meinen Studienkolleginnen Johanna Akbarzadeh und Patricia Schmidt für die moralische Unterstützung.

Natürlich gilt mein Dank auch meinen Eltern, für die finanzielle Unterstützung, die es mir überhaupt erst möglich gemacht hat zu studieren. Auch meinem Bruder und seiner Frau möchte ich danken, die mich in besonders anstrengenden Zeiten immer wieder aufgemuntert haben.

Ein besonderer Dank gilt auch meinen "Nicht-Physiker-"Freunden, die sich mit Engelsgeduld meine Ausführungen über mein Diplomarbeitsthema angehört und ohne zu nörgeln die zeitliche Vernachlässigung hingenommen haben.

Zu guter Letzt möchte ich mich bei meinem Freund Erich, der sich inzwischen wohl auch schon wieder auf Gesprächsthemen fern ab von Filtermaterialien und Wägeregebnaten freut, danken, der eine große Unterstützung, während des Erstellens der Diplomarbeit, für mich war.

# Curriculum Vitae

## *Personalien:*

Name: Teresa Torzicky  
Geburtsdatum: 23.11.1985  
Geburtsort: Wien  
Email-Adresse: teresa.torzicky@gmail.com

## *Ausbildung:*

seit Okt. 2004 Physikstudium an der Universität Wien  
22. Juni 2004 Abschluss der Reifeprüfung mit ausgezeichnetem Erfolg  
1996 - 2004 BRG-ORG-BORG 22, Polgarstrasse 24, 1220 Wien

## *Arbeits Erfahrung:*

Sep. 2008 - Juli 2009 Wissenschaftliche Mitarbeiterin im Rahmen des FWF-Projekts "Wolkenkondensationskerne in Atmosphäre und Laboraerosol"  
Juli 2008 - Aug. 2008 Praktikum an der Queen's University Belfast, Großbritannien  
März 2008 - Juni 2008 Wissenschaftliche Mitarbeiterin im Rahmen des FWF-Projekts "Wolkenkondensationskerne in Atmosphäre und Laboraerosol"  
Okt. 2007 - Feb. 2008 Tutorin an der Fakultät für Physik, Universität Wien

## *Ehrenamtliche Arbeit:*

seit Okt. 2007 Mitglied bei IAESTE - International Association for the Exchange of Students for Technical Experience  
Mai 2005-Mai 2007 Mitglied der Studierendenvertretung Physik, Universität Wien