

*PHYSICAL AND CHEMICAL
CHARACTERIZATION OF AIRCRAFT
ENGINE EXHAUST PARTICLES*

A dissertation submitted to ETH Zurich for the degree of Doctor of Sciences

Presented by

Manuel Abegglen, MSc

Born 17 March 1983

Citizen of Iseltwald (BE), Switzerland

Accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Ulrike Lohmann, examiner

Dr. Andreas Petzold, co-examiner

Dr. Berko Sierau, co-examiner

ABSTRACT

Soot particles, formed by incomplete combustion of hydrocarbon fuels, affect the global radiation budget directly due to their strong light-absorbing nature and indirectly by interacting with clouds as cloud condensation nuclei and ice nucleating particles, consequently altering climate. Both the direct and the indirect effect result in radiative forcing components important to predict global warming. Moreover, these particles pose a risk to human health upon inhalation. These climate and health effects strongly depend on the physical and chemical properties of the soot particles such as size, mass, density, morphology, aerosol mixing state and chemical composition. This thesis provides information on unaltered, fresh soot particles emitted by different aircraft engines using experimental research focusing on their physical and chemical characterization. Aircraft emissions are an important anthropogenic source of soot particles near airports and in the upper troposphere where most of them are emitted.

The measurements on aircraft soot were conducted in the framework of the Aviation Particulate Regulatory Instrumentation Demonstration Experiment (A-PRIDE) campaigns. These campaigns were initiated in the course of the development of a new International Civil Aviation Organization (ICAO) certification standard for aircraft engine particulate matter exhaust. The experiments were performed at the Zurich Airport in an aircraft turbine test facility not usually accessible for research. They offered a rare opportunity to sample and study aircraft engine combustion products directly after emission, with data collected over the entire operating range of the engines. Observations were made using an Aerosol Time-of-Flight Mass Spectrometer (ATOFMS) and a Centrifugal Particle Mass Analyzer (CPMA).

The ATOFMS provides information on the chemical composition of single particles and their aerodynamic size. The measurements performed during the A-PRIDE campaigns are the first comprehensive mass spectrometric measurements on individual freshly emitted exhaust particles from aircraft engines. The CPMA classifies particles according to their mass-to-charge ratio. The combined knowledge on mass and size of the soot particles allows to determine their effective density and mobility-based fractal dimension.

Depending on engine type, 94.5 % to 97.5 % of the particles contained elemental carbon, with elemental carbon to total carbon ratios ranging from 0.83 to 0.99. Since the ATOFMS is able to resolve refractory material, it was possible to detect metallic compounds present in the exhaust. All detected metals were found to be internally mixed with the soot particles, and more than 36 % of the analyzed particles contained at least one metallic compound. The detected metallic elements were Cr, Fe, Mo, Na, Ca, Al, V, Ba, Co, Cu, Ni, Pb, Mg, Mn, Si, Ti and Zr.

Investigations were made in order to identify and/or exclude potential sources of metallic compounds inside the engine, which would assist in reducing the emission of metallic compounds. To do so samples were collected from kerosene and lubricant oil as well as debris from wearing components, which were considered as potential sources, and then quantitatively analyzed using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS). Many of these elements were detected in multiple samples, making an unambiguous source assignment impossible. Therefore, the metals were assigned to their probable sources based on their concentrations in the samples and their appearance in the engine.

The PM emission from a widely used aircraft engine was investigated using the CPMA. These measurements were the first comprehensive dataset of particle mass values, enabling the description of the particle morphology over the entire operating range of this aircraft engine. At constant engine thrust, the effective density decreased with increasing particle size due to the increased void space in the agglomerate. With increasing thrust, the effective density generally increased. The fractal dimensions ranged from 1.85 to 2.32 for thrust levels <30 % and from 2.54 to 2.79 for thrust levels >30 %, which implies more closely packed soot agglomerates at higher engine thrust.

Using the effective density and the measured particle size distribution, PM mass concentrations at the instruments and the total PM mass emissions at the engine exit were estimated. The estimates of the PM mass concentrations were in good agreement with values obtained using the widely assumed unit density (1000 kg/m^3) as well as with real-time black carbon mass measurements. Thus, for this engine, the unit particle density is a good approach to convert the measured particle size distributions into PM mass. The measured effective density distribution and the unit density were further used to predict PM mass losses in the sampling system.

ZUSAMMENFASSUNG

Russpartikel, welche durch unvollständige Verbrennung von Kohlenwasserstoffbrennstoffen entstehen, beeinflussen direkt das globale Strahlungsgleichgewicht der Erde aufgrund ihrer ausgeprägten Eigenschaft, Licht zu absorbieren, und indirekt durch ihre Interaktion mit Wolken, was in der Folge das Klima beeinflusst. Der direkte und der indirekte Effekt resultieren in Strahlungsantriebskomponenten, welche wichtig sind, die globale Erwärmung vorauszusagen. Darüber hinaus stellen diese Partikel ein Risiko für die Gesundheit dar, wenn sie eingeatmet werden. Die Auswirkungen auf das Klima und die Gesundheit hängen stark von den physikalischen und chemischen Eigenschaften der Russpartikel wie Grösse, Masse, Dichte, Morphologie, Mischungszustand des Aerosols und chemische Zusammensetzung ab. Die vorliegende Arbeit liefert Informationen über physikalische und chemische Eigenschaften von frisch emittierten Russpartikeln aus verschiedenen Flugzeugturbinen mittels experimenteller Forschung. Flugzeugemissionen sind eine wichtige Quelle von Russpartikel in der Nähe von Flughäfen und in der oberen Troposphäre, wo die meisten ausgestossen werden.

Die Messungen der Flugzeugabgase wurden im Rahmen der Aviation Particulate Regulatory Instrumentation Demonstration Experiment (A-PRIDE) Kampagnen durchgeführt. Diese Kampagnen wurden im Zuge der Entwicklung eines neuen ICAO (International Civil Aviation Organization) Zertifizierungsstandards für Feinstaub im Abgas von Flugzeugtriebwerken ins Leben gerufen. Die Experimente wurden am Flughafen Zürich in einer Testzelle für Flugzeugturbinen durchgeführt, welche normalerweise nicht für die Forschung zugänglich ist. Sie boten eine seltene Gelegenheit, Verbrennungsprodukte von Flugzeugtriebwerken direkt nach ihrer Emission zu sampeln und zu studieren. Dazu wurden ein Einzelpartikel Flugzeitmassenspektrometer (ATOFMS) und ein Zentrifugal Partikelmassen Analysegerät (CPMA) verwendet.

Das ATOFMS liefert Informationen über die chemische Komposition einzelner Partikel und deren aerodynamischen Grössen. Die während der A-PRIDE Kampagnen durchgeführten Messungen sind die ersten umfassenden massenspektrometrischen Messungen von einzelnen, frisch ausgestoßenen Abgaspartikel von Flugzeugtriebwerken. Der CPMA klassiert Partikel nach ihrem Masse-zu-Ladung Verhältnis. Das kombinierte

Wissen über Masse und Grösse der Russpartikel erlaubt, die effektive Dichte und die mobilitätsbasierende fraktale Dimension zu bestimmen.

Je nach Turbinentyp enthielten 94,5 % bis 97,5 % der Partikel elementaren Kohlenstoff und das Verhältnis von elementarem zu totalem Kohlenstoff betrug zwischen 0,83 und 0,99. Da das ATOFMS hitzebeständiges Material messen kann, war es möglich metallische Verbindungen im Abgas zu identifizieren. Alle gefundenen Metalle waren intern gemischt mit den Russpartikeln und mindestens 36 % der untersuchten Partikel enthielten wenigstens eine metallische Verbindung. Die detektierten metallischen Elemente waren Cr, Fe, Mo, Na, Ca, Al, V, Ba, Co, Cu, Ni, Pb, Mg, Mn, Si, Ti und Zr.

Untersuchungen wurden gemacht, um die gefundenen metallischen Verbindungen ihren entsprechenden Quellen in der Turbine zuzuordnen. Dies ist relevant, um die Emissionen von Metallverbindungen zu reduzieren. Dazu wurden Proben von Kerosin, Getriebeöl und Ablagerungen von Turbinenverschleisskomponenten, welche als potentielle Quelle betrachtet werden, gesammelt. Diese Proben wurden dann mittels quantitativer induktiv gekoppelter Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS) untersucht. Viele dieser Elemente konnten in zwei oder sogar allen drei Proben festgestellt werden, was eine eindeutige Zuordnung verunmöglichte. Daher wurden die Metalle aufgrund ihrer Konzentrationen in den Proben und ihrem Vorkommen in der Turbine ihren wahrscheinlichen Quellen zugeordnet.

Die Feinstaubemissionen einer weit verbreiteten Flugzeugturbine wurden mit dem CPMA untersucht. Aus diesen Messungen resultierte der erste umfassende Datensatz von Werten, welche wichtig sind, um die Morphologie von emittierten Rußpartikel über den gesamten Leistungsbereich dieser Flugzeugturbine zu beschreiben. Bei konstanter Schubleistung nahm die effektive Dichte mit zunehmender Partikelgrösse aufgrund des zunehmenden Lückenvolumens im Agglomerat ab. Für eine bestimmte Partikelgrösse nahm die effektive Dichte mit zunehmender Schubleistung generell zu. Die fraktalen Dimensionen lagen zwischen 1,85 und 2,32 bei einer Schubleistung <30 % und zwischen 2,54 und 2,79 bei höherer Schubleistung, dies deutet auf generell kompaktere Russagglomerate bei höherem Schub hin.

Die effektive Dichte und die Partikelgrößenverteilungen wurden verwendet, um die Feinstaubmassenkonzentrationen bei den Instrumenten und die Gesamtmasse der Feinstaubemissionen hinter der Turbine abzuschätzen. Die geschätzten Werte der Feinstaubmassenkonzentrationen waren in guter Übereinstimmung mit den Werten, die unter Verwendung der weithin angenommen Einheitsdichte (1000 kg/m^3) sowie mit

Echtzeitmessungen der Russmasse ermittelt wurden. Für diese Turbine ist die Einheitsdichte somit ein guter Ansatz, um die gemessenen Partikelgrößenverteilungen in Feinstaubmasse umzurechnen. Die gemessene Verteilung der effektiven Dichten und die Einheitsdichte wurden weiter verwendet, um Massenverluste des Feinstaubes im Probenahmesystem vorherzusagen.