

汽车排气尾流中微粒分布及其变化特性的研究

付娟¹, 宁智^{1*}, 苏丽萍¹, 姜大海², 资新运²

(1. 北京交通大学机电工程学院, 北京 100044; 2. 军事交通学院汽车系, 天津 300161)

摘要: 根据微粒核化、凝并及凝结模型对汽车排气尾流中微粒分布的变化特性进行了分析. 结果表明, 微粒的核化增加了排气尾流中超细微粒的数量; 微粒的凝并和凝结将改变排气尾流中的微粒分布. 在核化、凝并及凝结过程同时存在时, 核化对微粒分布的影响相对较小, 微粒分布的变化主要受凝并和凝结的作用. 在排气管出口处, 微粒的核化、凝并及凝结过程比较剧烈, 微粒分布变化较大; 随着距排气管出口距离的增加, 微粒演变逐渐减弱. 研究工作可以为汽车排放控制策略的确定以及汽车微粒对人体健康影响的研究提供依据.

关键词: 汽车; 微粒; 分布; 核化; 凝并; 凝结

中图分类号: X701 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2007)05-0952-06

Study on the Evolution Characteristics of the Particle Distribution in the Vehicle Exhaust Plume

FU Juan¹, NING Zhi¹, SU Li-ping¹, JIANG Da-hai², ZI Xin-yun²

(1. College of Mechanical and Electrical Engineering, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China; 2. Department of Automobile Engineering, College of Military Transportation, Tianjin 300161, China)

Abstract: The evolution characteristics of particle distribution in the vehicle exhaust plume have been investigated based on the models of nucleation, coagulation and condensation of particles. The simulated results showed that nucleation created a large number of new nanoparticles, and coagulation and condensation changed the distribution of particles in the vehicle exhaust plume. The effect of nucleation on the distribution of exhaust particles was weaker, and the distribution of exhaust particles was affected mainly by the effect of coagulation and condensation. The process of nucleation, coagulation and condensation was intense near the exit of the tailpipe and the variation of the particle distribution with time was strong. With the increase of the distance from the exit of the tailpipe, the evolution of exhaust particles got weaker. This work can provide much more information necessary for the establishment of vehicle emission control strategies and the study of the effect of vehicle particles on the human health.

Key words: vehicle; particle; distribution; nucleation; coagulation; condensation

在现代大都市中, 汽车尾气排放已经成为环境污染的重要因素之一^[1]. 在汽车排气尾流中, 排气微粒处于极其不稳定的状态, 会发生剧烈的可凝结组分的核化与凝结以及微粒间的凝并等过程. 排气尾流中的稀释比、微粒浓度以及粒径分布等都会对排气微粒的分布及其演变过程产生影响.

近年来, 汽车微粒排放问题已受到高度重视, 人们对汽车排气微粒的核化、凝并及凝结过程进行了一定的理论研究工作, 建立了许多描述微粒核化、凝并及凝结数学模型^[2~6]. 但这些模型主要是针对微粒核化、凝并及凝结中的某一过程, 难以反映汽车排气尾流中微粒的真正变化历程. 已有的研究成果缺乏对汽车尾流中排气微粒的分布及其变化规律的系统认识. 为了合理地评估汽车排气微粒对人体健康的影响, 对汽车微粒在排气尾流中的分布、变化特性以及变化规律的研究是十分必要的.

本研究根据已有的分别描述微粒核化、凝并及凝结各过程的数学模型, 在适当假设与简化条件下,

构造了用于描述汽车排气尾流中微粒分布及其变化的数学模型, 在此基础上对汽车排气尾流中的微粒分布及其变化特性进行了分析, 得出汽车排气尾流中微粒分布的变化规律. 研究工作可以为汽车排放控制策略的确定及汽车微粒对人体健康影响的研究提供依据.

1 数学模型

在微粒核化、凝并及凝结过程中, 微粒分布的变化可由以下离散动力学方程进行描述^[7]:

$$\frac{\partial c_k}{\partial t} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{k-1} \beta_{k-j,j} c_{k-j} c_j - c_k \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{k,j} c_j + J(t) \delta(k) + \beta_{1,k-1} c_1 c_{k-1} - \beta_{1,k} c_1 c_k \quad (1)$$

式中, c_k 为微粒数量浓度; β 为碰撞微粒间的凝并系

收稿日期: 2006-06-22; 修订日期: 2006-10-26
基金项目: 国家自然科学基金项目(40475048); 北京市自然科学基金项目(8042018)

作者简介: 付娟(1980~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为汽车排放与控制技术, E-mail: fjkattysnow@163.com

* 通讯联系人, E-mail: ningzhixx@sina.com

数; $J(t)$ 为微粒的核化率; δ 是 Kronecker 算子.

式(1)右端第 1、2 项给出的是微粒凝并对微粒分布的影响; 第 3 项给出的是可凝结组分的核化对微粒分布的影响; 最后 2 项表示的是可凝结组分在微粒表面上的凝结对微粒分布的影响.

式(1)中的凝并系数 β 可由下式计算^[8]:

$$\beta_{i,j} = \frac{4\pi(r_i + r_j)(D_i + D_j)}{r_i + r_j + (\delta_i^2 + \delta_j^2)^{1/2} + (\bar{v}_{pi}^2 + \bar{v}_{pj}^2)^{1/2}(r_i + r_j)} \quad (2)$$

式中, r_i 和 r_j 分别为第 i 和第 j 个微粒的半径; D_i 和 D_j 分别为第 i 和第 j 个微粒的扩散系数.

$$D_i = \frac{k_b T}{6\pi r_i \mu} \left[\frac{5 + Kn_i + 6Kn_i^2 + 18Kn_i^3}{5 - Kn_i + (8 + \pi)Kn_i^2} \right] \quad (3)$$

式中, k_b 为波尔兹曼常数; T 为温度; μ 为排气动力粘度; Kn_i 是半径为 r_i 的微粒的克努森数.

在式(2)中, 微粒热速度 $\bar{v}_{pi}$ 和 δ_i 可按下式进行计算^[8]:

$$\bar{v}_{pi} = \left(\frac{8k_b T}{\pi r_i} \right)^{1/2} \quad (4)$$

$$\delta_i = \frac{[(2r_i + \lambda_{pi})^3 - (4r_i^2 + \lambda_{pi}^2)^{3/2}]}{6r_i \lambda_{pi}} - 2r_i \quad (5)$$

式中, λ_{pi} 为微粒平均自由程, $\lambda_{pi} = 8D_i / \pi \bar{v}_{pi}$.

可凝结组分在局部过饱和区自发形成核的过程可看作是均相核化. 汽车排气中的 H_2SO_4 和水蒸汽形成微粒的过程属于二元均相核化, H_2SO_4 核子的核化率可由下式给出^[9]:

$$J = C \exp(-\Delta G^* / k_b T) \quad (6)$$

式中, C 为频率因子; ΔG^* 为形成核子所需的临界自由能.

形成核子所需的自由能可根据下式计算^[10]:

$$\Delta G = n_1(\mu_{1l} - \mu_{1g}) + n_2(\mu_{2l} - \mu_{2g}) + 4\pi r^2 \sigma \quad (7)$$

式中, n_1 和 n_2 分别为核子中 H_2O 和 H_2SO_4 的分子数目; μ_{1l} 和 μ_{2l} 分别为 H_2O 和 H_2SO_4 处于液态时的化学势能; μ_{1g} 和 μ_{2g} 分别为 H_2O 和 H_2SO_4 处于气态时的化学势能; σ 为二元混合物表面张力.

方程(6)中的形成核子所需的临界自由能 ΔG^* 可通过求解下述方程得到^[11]

$$\left[\frac{\partial \Delta G}{\partial n_1} \right]_{n_2} = 0, \quad \left[\frac{\partial \Delta G}{\partial n_2} \right]_{n_1} = 0 \quad (8)$$

以上数学模型可以看作是已有的关于微粒核化、凝并及凝结各过程的经典数学模型和近年来建

立的数学模型的 1 种组合. 利用该组合模型可以分析同时存在微粒核化、凝并及凝结过程时汽车排气尾流中微粒的分布特性及其变化规律. 由于描述微粒核化、凝并及凝结各过程的数学模型已被大量试验所验证, 被普遍认可和采用, 因此可以认为上述组合模型的计算结果是可信的.

在计算过程中, 模型中的一些参数取自实际柴油机的排气参数, 因此计算结果可以比较真实地反映汽车排气尾流中微粒分布的演变情况.

2 结果与分析

已有的大量实验测试结果表明, 汽车排气尾流中的微粒分布可近似为对数正态分布^[12]:

$$n(d) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi \ln \sigma}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{\ln(d/d_p)}{\ln \sigma} \right]^2 \right\} \quad (9)$$

式中, N_0 为初始微粒总数; d 和 d_p 分别为微粒粒径和微粒初始几何平均粒径; σ 为微粒分布几何标准方差.

计算分析时, 在汽车排气尾流中选取 4 个不同的位置. 参考已有的实验测试数据和汽车排气尾流结构参数的计算结果^[12, 13], 确定这 4 个不同位置上的排气稀释比、排气温度、相对湿度以及微粒分布. 在此基础上, 对排气尾流中不同位置处的微粒分布及其变化特性进行分析.

位置 1 取为排气管出口处. 此处微粒数浓度取为 $N_0 = 10^8$ 个 $\cdot \text{cm}^{-3}$, 初始几何平均粒径 $d_p = 90$ nm, 分布几何标准方差 $\sigma = 1.6$, 排气温度 $T = 90^\circ\text{C}$, 相对湿度 $\varphi = 80\%$; 由于此处排气还未扩散稀释, 因此稀释比 $\lambda = 1$.

位置 2 取为排气管中心轴线上距排气管出口 0.5 m 处. 此处微粒数浓度取 $N_0 = 10^6$ 个 $\cdot \text{cm}^{-3}$, 初始几何平均粒径 $d_p = 110$ nm, 分布几何标准方差 $\sigma = 1.8$; 由于排气的迅速扩散稀释, 排气温度 $T = 45^\circ\text{C}$, 相对湿度 $\varphi = 60\%$, 稀释比 $\lambda = 300$.

位置 3 取为排气管中心轴线上距排气管出口 1.0 m 处. 此处微粒数浓度取 $N_0 = 10^5$ 个 $\cdot \text{cm}^{-3}$, 初始几何平均粒径 $d_p = 150$ nm, 分布几何标准方差 $\sigma = 2.1$, 排气温度 $T = 30^\circ\text{C}$, 相对湿度 $\varphi = 50\%$, 稀释比 $\lambda = 800$.

位置 4 取为距排气管出口水平距离 1.0 m、中心轴线上方 1.0 m 位置处. 由于排气的稀释, 微粒数浓度 $N_0 = 10^4$ 个 $\cdot \text{cm}^{-3}$, 初始几何平均粒径 $d_p = 200$ nm, 分布几何标准方差 $\sigma = 2.6$, 排气温度 $T = 25^\circ\text{C}$,

相对湿度 $\varphi = 50\%$ ，稀释比 $\lambda = 2\,000$.

图 1 给出的是在微粒凝并的作用下，排气尾流

中不同位置处微粒分布随时间的变化.

从图 1 中可以看到，随着时间的增加，微粒凝并

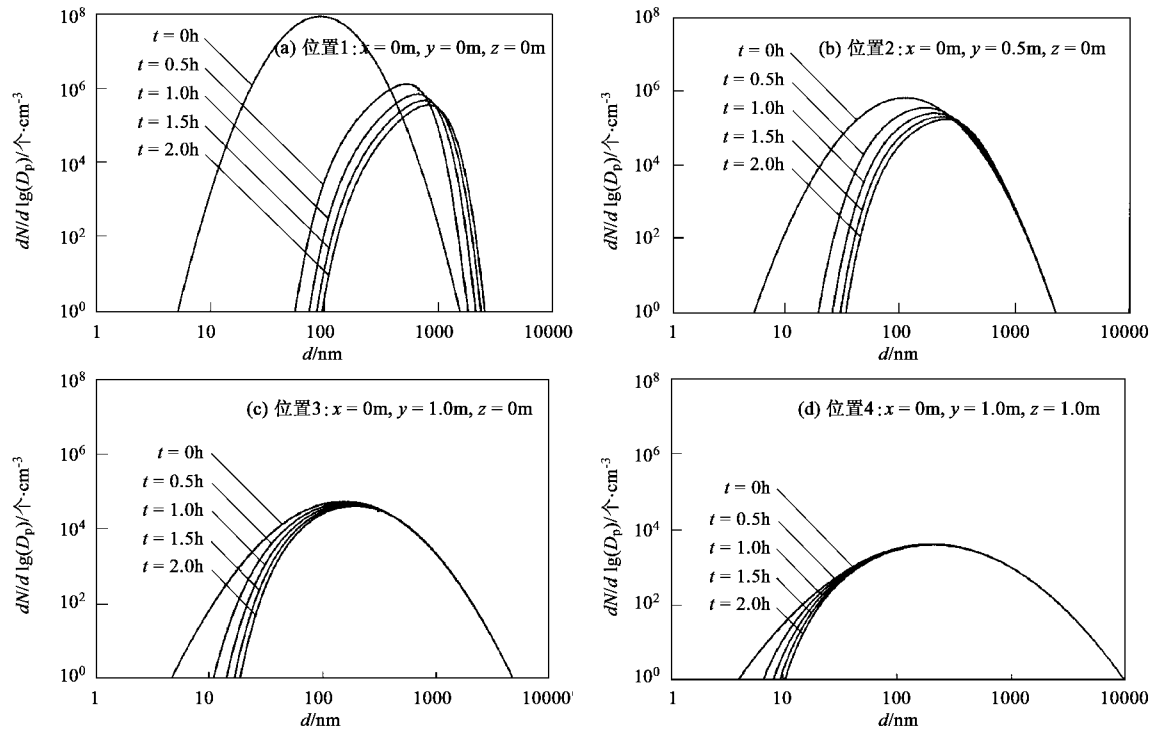


图 1 凝并对排气尾流中微粒分布的影响

Fig.1 Effect of coagulation on the particle distribution in the exhaust plume

使尾流中的微粒粒径呈增大趋势，微粒总数减少. 距离排气管出口较近的位置，由于初始微粒总数较多，同时由于温度较高导致凝并系数较大，故凝并过程比较剧烈. 在排气管出口处，微粒几何平均粒径在 1 h 里从 90 nm 增大到约 1 000 nm，增大近 10 倍；但随着微粒总数的下降，微粒粒径和微粒总数的变化逐渐变缓. 随着距排气管出口距离的增加，尾流中的微粒总数和温度迅速降低，故凝并过程减慢，在距排气管出口 1.0 m 处以外，凝并对微粒分布的影响相对较小.

图 2 给出的是在核化与凝并的共同作用下，排气尾流中不同位置处微粒分布随时间的变化.

图 2 显示，由于核化的影响，尾流中产生了许多核化微粒，其粒径范围在 2 ~ 5 nm 左右. 由图 2 可以看出，在排气管出口处，由于 SO₂ 浓度较大，因此微粒核化率很高，核化微粒的数浓度约为 10⁸ 个·cm⁻³. 随着距排气管出口距离的增加，核化微粒数目逐渐减小. 在距排气管出口约 1.0 m 处，核化微粒数浓度降为 10⁴ 个·cm⁻³，但核化微粒的粒径变化不大. 从图 2 中可以发现，位置 4 处的核化微粒数量较位置 3 处有所增加. 虽然位置 4 处的相对湿度与

位置 3 处的相同，且排气稀释比较大，但由于该处温度相对较低，故微粒核化率有所回升.

从图 2 中还可以发现，由于核化微粒极小，核化微粒与其他微粒间的凝并对微粒分布的影响相对较小. 只有在排气管出口处，由于核化微粒较多，凝并系数较大，核化微粒间的凝并比较剧烈，从而使核化微粒的粒径随着时间的增加有微小增大的趋势，但核化微粒与其他微粒的凝并对整个微粒分布的影响不大. 随着距排气管出口距离的增加，由于核化微粒数的减少，核化微粒对尾流中的微粒分布几乎没有影响.

排气尾流中同时发生的核化、凝并及凝结过程会对尾流中微粒的分布产生一定的影响.

图 3 给出的是在核化、凝并以及凝结共同作用下，尾流中不同位置处微粒分布随时间的变化.

从图 3 中可以看到，核化、凝并及凝结对微粒分布的影响包括 2 个方面：核化在尾流中产生了大量的超细微粒，其数量随尾流温度的降低和相对湿度的增加而升高；凝并和凝结使得尾流中微粒的几何平均粒径增大，其影响程度随微粒数量的减少和温度的降低而减小. 从图 3 与图 2 的对比中很难看出

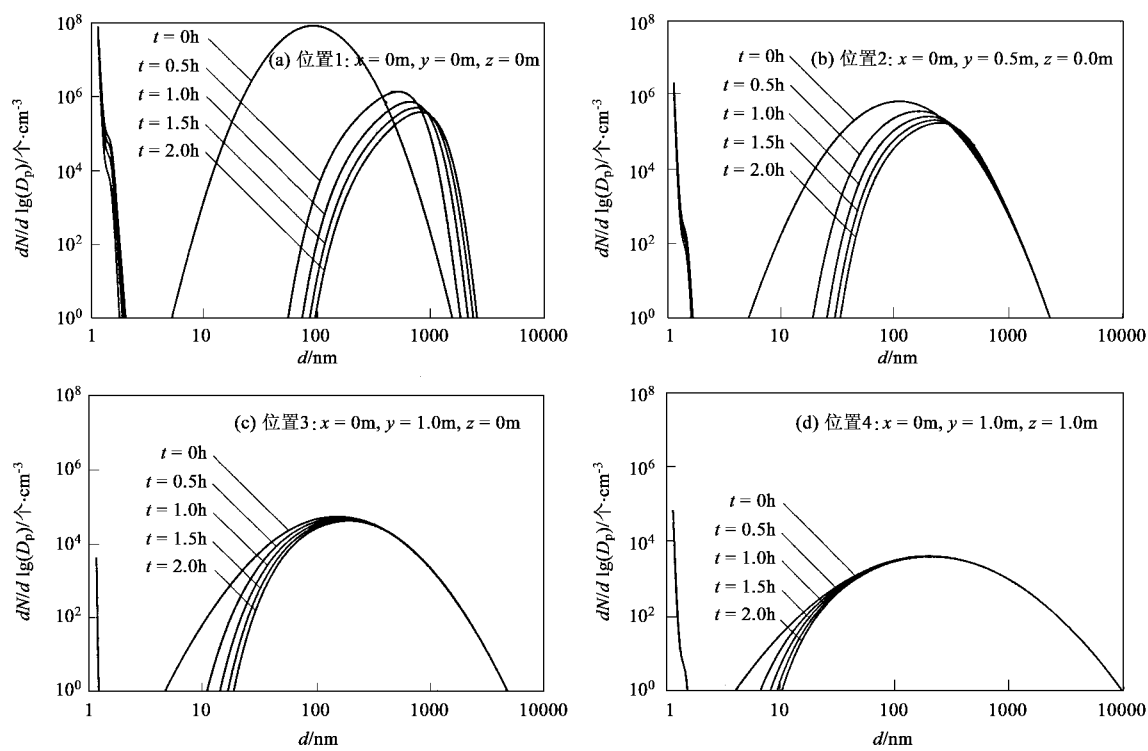


图 2 核化与凝并对排气尾流中微粒分布的影响

Fig.2 Effect of nucleation and coagulation on the particle distribution in the exhaust plume

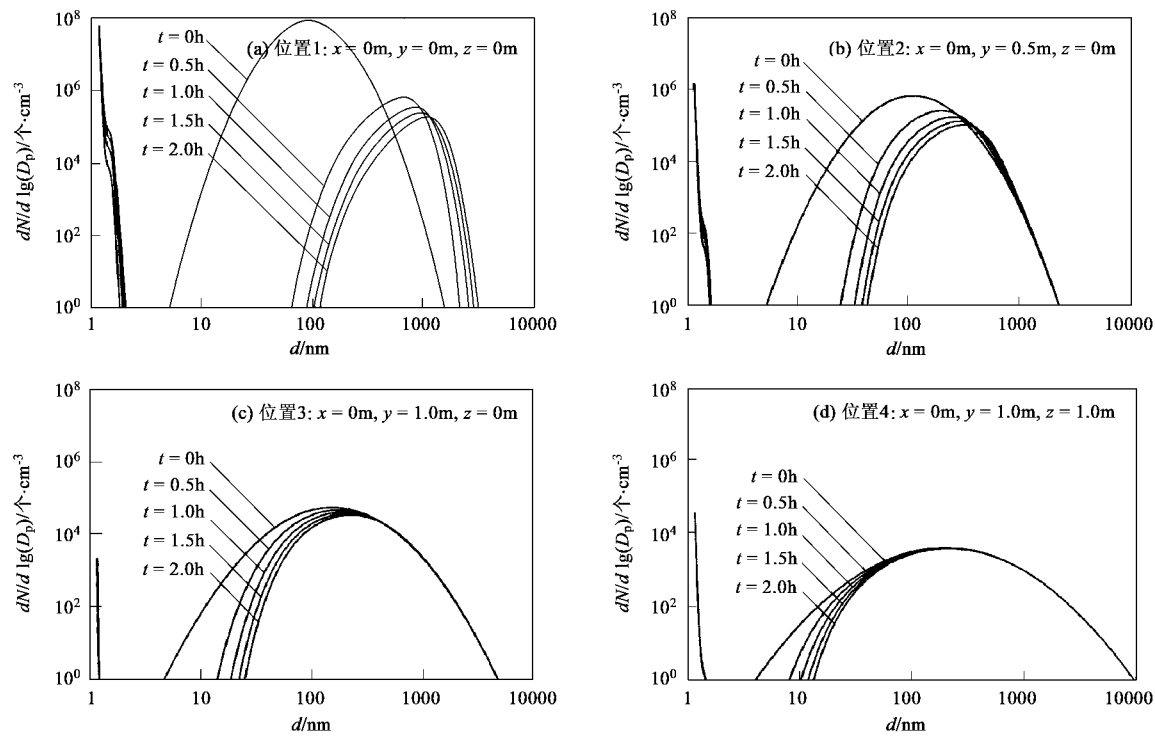


图 3 核化、凝并及凝结对排气尾流中微粒分布的影响

Fig.3 Effect of nucleation, coagulation and condensation on the particle distribution in the exhaust plume

存在凝结时微粒分布的变化,说明凝结对微粒分布的影响相对较小.

图 4 给出的是同时存在核化与凝并以及同时存在核化、凝并及凝结过程时尾流中不同位置处微粒分布随时间变化的比较.

从图 4 中可以看到,与不考虑凝结过程时微粒分布的变化相比较,凝结的存在使得微粒分布向大微粒方向移动.在排气管出口处,凝结对微粒分布变化的影响相对较大;随着距排气管出口距离的增加,凝结的影响逐渐减小.

在排气管出口处,由于温度较高,同时微粒数量较多,凝并和凝结都很剧烈,故对微粒分布影响很大;当考虑凝结时,微粒整体分布向大微粒方向移动更大距离,大微粒增多、小微粒减少.

随着距排气管出口距离的增加,凝并和凝结强度都有所降低,凝结对微粒整体分布的影响变小.由于凝结的存在,微粒几何平均粒径向大微粒侧移动,但凝结对微粒分布的影响主要集中于小微粒侧,小微粒的数量随着时间的增加而减少,而大微粒的数量及分布受凝结的影响则不大.

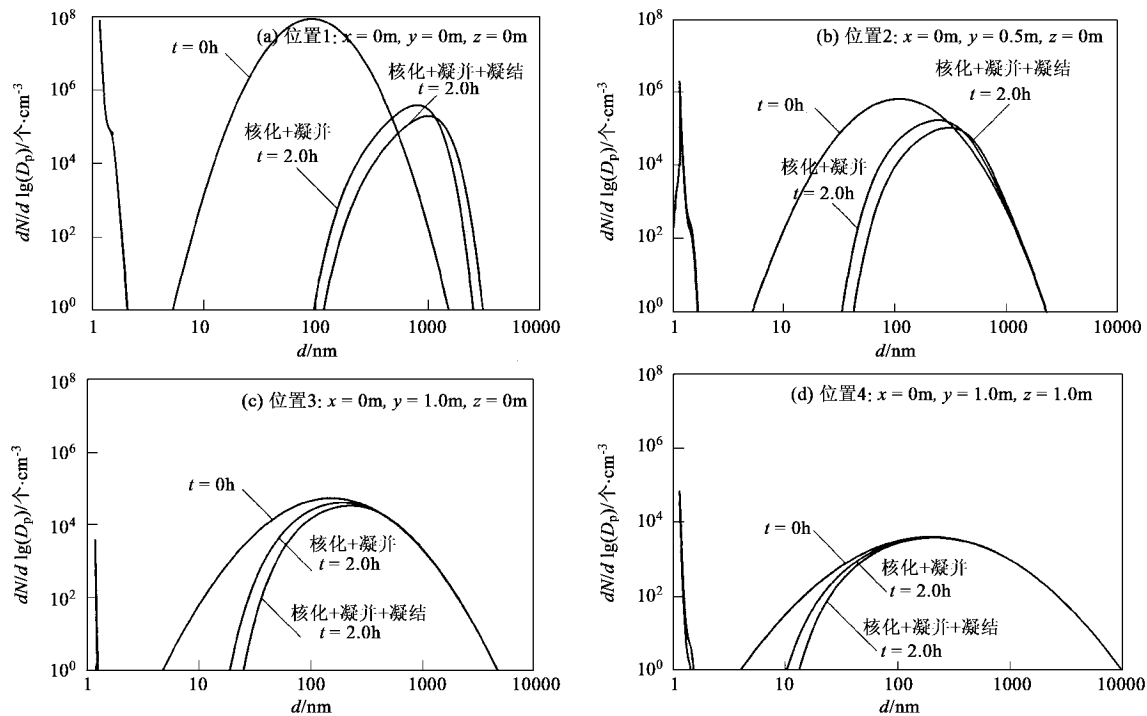


图 4 同时存在核化与凝并以及同时存在核化、凝并及凝结时微粒分布的比较
Fig.4 Comparison between the particle distributions under different evolution conditions

3 结论

- (1)在排气管出口处,微粒凝并剧烈,凝并后的微粒数量大幅减少,微粒分布整体向大微粒方向移动.距离排气管出口较远的位置处,由于温度下降和微粒数量减少,凝并过程减缓,微粒分布整体变化相对较小.
- (2)核化增加了尾流中超细微粒的数量.排气的扩散稀释将有助于减少核化微粒的数量.
- (3)在排气管出口处,核化产生的小微粒较多,核化微粒间的凝并比较剧烈,使得核化产生的超细微粒的粒径随着时间的增加有微小增大的趋势.但相对来说,核化微粒之间以及与其他微粒间的凝并对

- 整个微粒分布的影响不大.
- (4)在排气管出口处,凝并和凝结对微粒分布的影响较大;当存在凝结时,微粒整体分布向大微粒方向具有较大的移动.随着距排气管出口距离的增加,凝结对微粒整体分布的影响变小;虽然微粒几何平均粒径向大微粒一侧移动,但凝结对微粒分布的影响则主要集中于小微粒一侧;小微粒数量随着时间的增加而减少,而大微粒数量及分布受凝结的影响则不大.

参考文献:
[1] Ahlvik P. Environmental and health impact from modern cars, a comparison between two petrol and two diesel cars with varying emission [R]. Report for the Swedish National Road Administration, Stockholm: May 2002. 1~36.

[2] Efendiev Y, Zachariah M R. A model for two-component aerosol coagulation and phase separation: a method for changing the growth rate of nanoparticles [J]. Chemical Engineering Science, 2001, **56** (22): 5763 ~ 5769.

[3] Anttila T, Kerminen V M. Condensational growth of atmospheric nuclei by organic vapours [J]. Journal of Aerosol Science, 2003, **34** (1): 41 ~ 61.

[4] Dong-Hee Kim, Gautam M, Gera D. Modeling nucleation and coagulation modes in the formation of particulate matter inside a Turbulent Exhaust Plume of a Diesel Engine [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2002, **249**(1): 96 ~ 103.

[5] Feilberg A, Kamens R M, Strommen M R, *et al.* Modeling the formation, decay, and partitioning of semivolatile nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons (nitronaphthalenes) in the atmosphere [J]. Atmospheric Environment, 1999, **33**(4): 1231 ~ 1243.

[6] Sorokln A, Vancassel X, Mirabel P. On Volatile Particle Formation in Aircraft Exhaust Plumes [J]. Phys Chem Earth (C), 2001, **26** (8): 557 ~ 561.

[7] Seinfeld J H, Pandis S N. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change [M]. John Wiley & Sons Inc, New York: 1997. 20 ~ 60.

[8] Donghee Kim, Gautama M, Gera D. Parametric studies on the formation of diesel particulate matter via nucleation and coagulation modes [J]. Journal of Aerosol Science, 2002, **33**(6): 1609 ~ 1621.

[9] Efendieva Y, Zachariahb M R. Hierarchical hybrid Monte-Carlo method for simulation of two-component aerosol nucleation, coagulation and phase segregation [J]. Journal of Aerosol Science, 2003, **34** (1): 169 ~ 188.

[10] Kulmala M, Laaksonene A, Pirjola L. Parameterizations for Sulfuric Acid/Water Nucleation rates [J]. Journal of Geophysical Research, 1998, **103**(21): 8301 ~ 8307.

[11] 苏丽萍. 汽车排气尾流及尾流中微粒演变规律的研究[D]. 北京: 北京交通大学, 2006.

[12] 宁智, 张振顺, 资新运, 等. 怠速条件下汽车排气污染物在排气尾流中扩散特性的实验研究[J]. 环境科学学报, 2005, **25**(8): 1151 ~ 1155.

[13] 宁智, 张振顺, 付娟, 等. 怠速时汽车污染物在排气尾流中扩散特性的数值分析[J]. 环境科学, 2006, **27**(3): 424 ~ 430.