

DOI: 10.19650/j.cnki.cjsi.J2209998

凝结核粒子计数器的流场数值模拟及流量配比优化^{*}

郭皓天¹, 刘俊杰², 韩晓霞¹, 余来华¹, 肖 骥²
(1. 太原理工大学电气与动力工程学院 太原 030024; 2. 中国计量科学研究院 北京 100029)

摘 要:为推进凝结核粒子计数器(CPC)的研发并提升其检测性能,系统开展了CPC粒子生长器内的流场数值模拟和流量配比优化研究。对粒子生长器的基本结构和分析模型进行设计建立,通过Fluent软件模拟研究了粒子生长器内流场的参数分布情况,以及流量比对饱和度等参数变化和CPC理论计数效率的影响。模拟结果表明,鞘流结构能够约束气溶胶颗粒保持在流场轴心处饱和度高的位置流动,且流量比越高,气溶胶颗粒的扩散范围越小;在一定范围内提升流量比可以增大蒸汽质量分数以及饱和度的值,降低临界直径。在最优化流量参数下,所设计粒子生长器颗粒扩散范围仅4 mm,流场内最高饱和度值可达7以上。基于数值模拟数据,自主研发了CPC测量系统,并开展了计数效率校准实验,结果表明在7~200 nm粒径范围内13个点的校准相对误差均低于9%,符合校准规范。因此,基于数值模拟的CPC内粒子生长器结构设计及操作参数优化对CPC的研发具有指导意义。

关键词:凝结核粒子计数器;气溶胶;计算流体动力学;数值模拟;检测性能

中图分类号: TH89 **文献标识码:** A **国家标准学科分类代码:** 410.55

Flow field simulation and flow ratio optimization of condensation particle counter

Guo Haotian¹, Liu Junjie², Han Xiaoxia¹, Yu Laihua¹, Xiao Ji²
(1. College of Electrical and Power Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China;
2. National Institute of Metrology, Beijing 100029, China)

Abstract: To promote the development of condensation particle counter (CPC) and improve its detection performance, the research of flow field simulation and flow ratio optimization in CPC particle grower are carried out systematically. The basic structure and analytical model of the particle grower are designed and established. The parameter distribution in the flow field of the particle grower is investigated by Fluent software simulation. Meanwhile, the effect of the flow ratio on the variation of saturation and the theoretical counting efficiency of CPC is considered. Simulation results show that the sheath structure can restrict the aerosol particles to flow at the position with high saturation in the central axis of the flow field. The higher the flow ratio is, the smaller the diffusion range of aerosol particles is. In a reasonable range, the increasement of the flow ratio can increase the vapor mass fraction and saturation, and the critical diameter is reduced. Under the setting of optimized flow parameters, the particle diffusion range of self-designed particle grower is only 4 mm, and the maximum value of saturation can exceed 7. The self-designed CPC measurement system is designed according to the numerical simulation information, and the calibration experiment of its counting efficiency is carried out. The calibration results show that the relative errors of 13 points within the particle size range of 7~200 nm are all lower than 9%, which fit the calibration specifications well. Thus, the design of CPC structure and optimization of operational parameters based on the numerical simulation is instructive for CPC development.

Keywords: condensation particle counter; aerosol; computational fluid dynamics; numerical simulation; detection performance

0 引 言

近年来,空气中的细颗粒物PM_{2.5}已经成为我国很

多城市的首要污染物^[1-2]。而在众多PM_{2.5}污染源中,移动源排放是主要贡献之一,特别是对于很多大中城市而言,移动源排放贡献可达40%以上^[3]。因此在国家颁布实施的关于轻型车和重型车国六排放标准中,明

确规定了尾气排放中颗粒数浓度的限制要求,并推荐使用以凝结核粒子计数器(condensation particle counter, CPC)为核心设备的气溶胶颗粒浓度监测仪。与此同时,相比于其他原理的同类型测量仪器,CPC 因具有高检测精度、宽测量范围等计量特性,已被广泛应用于大气颗粒物粒径谱测量、计量校准、过滤效率评价等领域^[4-5]。因此,有关领域的国内外研究人员纷纷致力于CPC 的研发工作^[6-9]。

作为评判 CPC 性能的重要指标,粒径测量下限和颗粒计数效率一直是仪器研发和用户关注的主要参数,其主要受到粒子生长器中粒子生长情况以及光学检测模块检测性能两方面的影响^[10-11]。1)在粒子生长器中,饱和器和冷凝器的绝对温度及相对温差直接影响到工作液的蒸发冷凝过程^[12-13];采样总流量及鞘流流量占比影响进入粒子生长器的气溶胶颗粒浓度以及饱和腔中鞘流携带工作液蒸汽的效率^[14]。这些因素都会直接影响到工作液蒸汽饱和度值大小及空间分布,从而影响粒子生长效率^[15]。2)对于光学检测模块,其测量粒径及检测浓度上下限均为 CPC 操作参数(如颗粒物浓度、采样流量、鞘流流量占比等)设定所需考虑的因素^[16]。因此,鉴于影响CPC 性能因素的多样性及复杂性,对粒子生长器内流场进行参数分布模拟预测和优化是加快 CPC 研发进度、提升检测性能的主要途径之一^[17-18]。

基于上述背景,本文系统开展了 CPC 粒子生长器内的流场数值模拟和流量配比优化研究。首先,对粒子生长器的结构参数及工作参数进行了设计和量化,并对流场内的流动状态进行初步的计算判断,以确保采样气流流动形式符合预期构想;随后根据基本操作参数对模型边界条件等进行设置,以模拟粒子生长区域的饱和度及临界直径的空间分布情况;最后固定采样总流量,梯度改变毛细管流量与鞘流流量比,系统研究流量比对工作液蒸汽质量分数、饱和度等参数的影响,并最终得到 CPC 的计数效率与流量比的相关关系。根据数值模拟研究得到的结构参数及操作参数设置,设计加工了粒子生长器,搭建了自研 CPC 测量系统,并完成了系统的计数效率校准验证。

1 模型的构建

1.1 CPC 系统描述及粒子生长器建模

本文 CPC 包含粒子生长器和光学检测模块两个部分,基本结构如图 1 所示。气溶胶样品以恒定流量流经采样管后被分流为两部分。一部分直接由毛细管进入冷凝管中;另一部分经高效过滤器去除颗粒杂质后作为鞘流气进入饱和腔中。存储于饱和腔内的工作液在恒温加热及多孔介质扩散的作用下加速挥发形成蒸汽,并在鞘

流气的推动作用下于毛细管出口处与第 1 部分采样气汇合后形成鞘流结构,隔热段保证了冷凝管和饱和腔温度的相互独立。在冷凝管中,过饱和蒸汽在气溶胶颗粒表面遇冷发生异质冷凝现象,实现颗粒生长。长大后的颗粒流经冷凝管出口处的光学检测模块,实现颗粒计数。检测完成的采样气经过高效过滤器、洗气瓶等环节处理后方可排放至空气中。

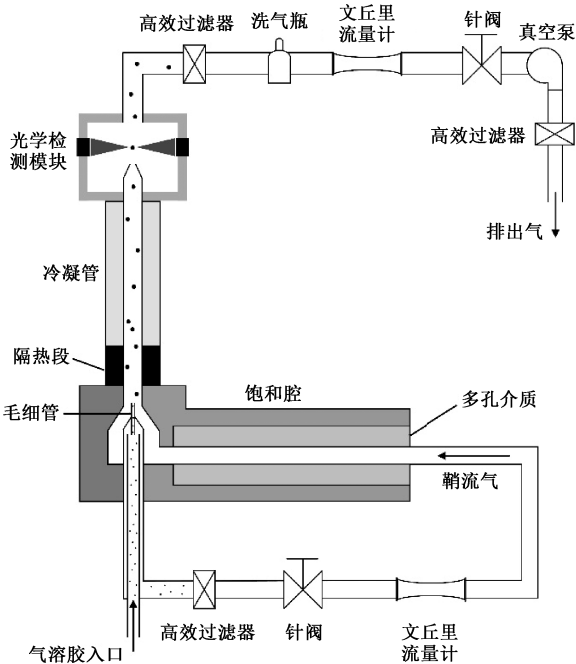


图 1 CPC 基本结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of CPC basic structure

本文研究中,粒子生长器主要由毛细管、冷凝管、隔热段和饱和腔 4 部分构成,各部分流场区域尺寸如图 2 所示。由于粒子生长器各部分的几何形状是呈轴向对称的(即为圆柱),因此其几何尺寸在这里等效简化为基于轴向和径向的二维坐标描述。

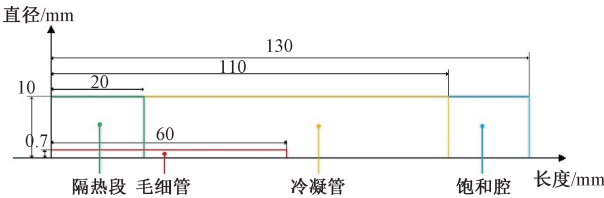


图 2 粒子生长器几何尺寸的二维坐标表示

Fig. 2 Two dimensional coordinate representation of the particle grower geometry

在粒子生长器中,冷凝管内流场部分是气溶胶粒子流动及冷凝生长的区域,对于该区域中的气流流动状态,我们期望其保持层流状态来保证采样气溶胶气流和鞘流的相互独立流动,以防止气溶胶粒子发生湍流滞留以及

壁挂从而损失。雷诺数是判断流体流动状态的参数,对于圆管内流动,定义雷诺数 R_e 为:

$$R_e = \frac{ud}{\nu} \quad (1)$$

式中: u 为流体平均流速, d 为管径, ν 为运动黏度。经计算,本研究中冷凝管内流场雷诺数为 $R_e = 47.29$, 其值远小于 2 300, 判断为层流状态,符合预期。

1.2 求解方法

对于粒径为 D_p 的颗粒, CPC 的计数效率 $\eta_{cpc}(D_p)$ 可表示为:

$$\eta_{cpc}(D_p) = \eta_{sam}(D_p) \times \eta_{act}(D_p) \times \eta_{det}(D_p) \quad (2)$$

式中: 采样效率 $\eta_{sam}(D_p)$ 定义为毛细管出口处的采样气溶胶颗粒平均浓度与从待检测气溶胶中的颗粒平均浓度之比, 它反映了气溶胶颗粒在采样管中的损失程度; 激活效率 $\eta_{act}(D_p)$ 和检测效率 $\eta_{det}(D_p)$ 分别定义为从毛细管流出的颗粒在冷凝管中被激活的比例, 以及由光学检测元件成功检测到的被激活的颗粒所占的比例。在理想状态下, 假定颗粒在粒子生长器中转移时不发生损失, 且所有被激活的颗粒均能被光学检测元件成功检测到, 此时采样效率 $\eta_{sam}(D_p)$ 和检测效率 $\eta_{det}(D_p)$ 均为 1, 即 $\eta_{cpc}(D_p) = \eta_{act}(D_p)$ 。

由于颗粒的异质冷凝生长发生在隔热段和冷凝管内流场中, 因此激活效率 $\eta_{act}(D_p)$ 的预测二维模型区域为从采样气溶胶气流与鞘流的汇合处开始, 向上延伸依次通过隔热段和冷凝管。对于粒径为 D_p 的颗粒, 其激活效率 $\eta_{act}(D_p)$ 可表示为:

$$\eta_{act}(D_p) = \frac{\sum_{i=1}^{K_{radial}} r_i (1 - r_i^2) N_{D_p}^*(r_i, D_p)}{\sum_{i=1}^{K_{radial}} r_i (1 - r_i^2) N_{D_p, in}^*} \quad (3)$$

式中: K_{radial} 为沿径向位置的离散最低临界直径值点的个数, r_i 为对应离散径向位置的半径, $N_{D_p, in}^*$ 为进入冷凝管的粒径为 D_p 的颗粒总数, $N_{D_p}^*(r_i, D_p)$ 为 r_i 位置被激活的粒径为 D_p 的颗粒数量, $r_i (1 - r_i^2)$ 项表示颗粒速度大小呈抛物线分布。通过比较颗粒粒径 D_p 与 r_i 位置的临界直径值 d_k 来判断颗粒是否被激活, 临界直径表示工作液蒸汽恰好不发生冷凝现象的最小颗粒直径, 当颗粒粒径 D_p 高于 d_k 时, 工作液蒸汽以该颗粒为凝结核发生异质冷凝现象, 颗粒被激活长大。临界直径 d_k 的计算式如下:

$$d_k = \frac{4\sigma M_w}{\rho R T \cdot \ln S} \quad (4)$$

式中: σ 、 M_w 、 ρ 分别为工作液的表面张力、分子量和密度, R 为通用气体常数, T 是蒸汽绝对温度, S 为饱和度, S 的计算式为:

$$S = \frac{p_v}{p_{sat}(T)} \quad (5)$$

式中: $p_{sat}(T)$ 为温度 T 下的工作液饱和蒸汽压, p_v 为工作液分压力。忽略蒸汽的径向扩散影响, p_v 的差分方程可表示为:

$$2U \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] \frac{\partial p_v}{\partial z} = D_v \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial p_v}{\partial r} \right) \quad (6)$$

式中: U 为流场中的平均流速, R 为流场半径, r 、 z 分别为流场径向和轴向位置, D_v 为工作液蒸汽扩散率, 它是关于绝对温度 T 和压强 p 的函数, 为:

$$D_v = \frac{4.20729 \times 10^{-5} T^{1.75}}{p} \quad [\text{m}^2/\text{s}] \quad (7)$$

基于上述分析, 通过对流场初始边界条件的设置, 模拟计算得到粒子生长器内流场的绝对温度、压强、流速等基本参数的空间分布, 进而计算得到流场中的工作液蒸汽质量分数、分压力、饱和度曲线以及临界直径分布, 最终得到 CPC 的理论计数效率曲线。由于流场中的各物理量是紧密耦合的, 例如流体的温度变化可能引起其密度以及扩散率等关键物理参数发生改变, 这种耦合关系的影响通常十分显著, 因此在本研究中采用有限体积法的数值求解策略对流场中的控制方程进行求解, 进而获得各物理参数的分布。

1.3 网格划分

计算域和控制方程的离散化是有限体积法的核心原则。通过将计算域划分为互不重叠的控制体网格, 并将待求解的控制方程施加在控制体节点上, 随后得到离散化控制方程组, 最后对方程组进行求解。

在本研究中, 使用 Ansys Fluent 2020 R2 仿真软件对 CPC 粒子生长器内流场的参数分布进行了模拟研究。根据 1.1 一节中建立的粒子生长器二维等效模型, 利用软件中的 Mesh 功能对模型进行网格划分。由于网格尺度的大小会直接影响计算结果, 导致结论变化。为保证计算精度, 对网格独立性进行了验证, 结果如图 3 所示。我们分别计算了冷凝管与隔热段交界中心位置的温度及表压强随网格数的变化情况, 结果显示, 当网格数量超过 30 000 时, 各参数几乎不随网格数目增加而变化。

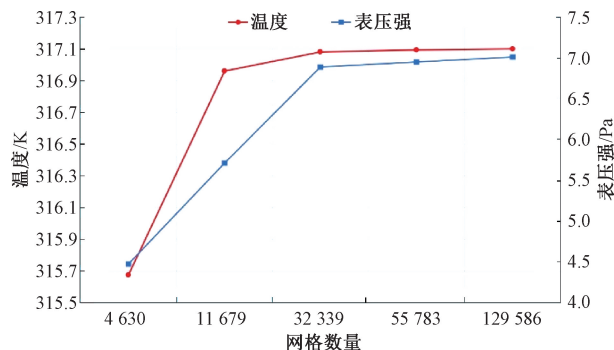


图3 网格独立性验证结果

Fig. 3 Grid independency validation results

根据网格独立性验证结果,在保证计算精度的前提下,为了尽可能提高计算效率,将系统模型划分为32 339个网格单元。在粒子生长器中,饱和腔的作用是平衡气溶胶颗粒温度,以及通过加热加速正丁醇工作液的挥发,真正发生颗粒异质冷凝生长的区域是冷凝管内流场,尤其是在冷凝管内流场壁面边界处和毛细管入口附近的参数变化更为剧烈。因此,在网格划分过程中,采用了非结构化的网格化分策略,冷凝管内流场中的网格分布更加密集,约占总网格数的70%,如图4所示,在冷凝管流场边界区域设置了5层膨胀层,并在流场边界及毛细管入口处进行了网格加密。参数显示该网格平均质量可达0.995,且平均斜度小于0.005,为高质量网格。

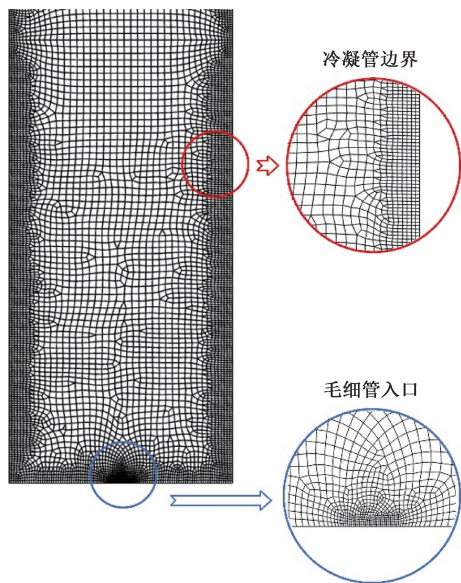


图4 冷凝管内流场网格分布

Fig. 4 Grid distribution of inter flow field in condensation tube

1.4 物理模型构建

粒子生长器内流场的物理模型构建总体分为两方面。一方面是基于能量方程模型、粘性模型和组分输运模型,研究流场内的相变、传热、流动等特性;另一方面是基于离散相模型,在毛细管入口加入固体颗粒,以研究颗粒在流场中的流动和扩散特征。

仿真的关键参数设置如下:1)选择瞬态计算方法以及压力基求解方法;2)根据实际情况在沿颗粒流动方向的反方向设置了大小为 9.8 m/s^2 的重力加速度;3)根据物理特性,分别创建了正丁醇蒸汽和正丁醇液体两种材料。物理模型的参数设置如下:1)勾选能量方程模型;2)在粘性模型中选择标准 $k-\varepsilon$ 模型;3)在组分输运模型中设置空气、正丁醇蒸汽和正丁醇液体三相;4)选择离散相模型,并在毛细管入口处添加固体颗粒。在颗粒特性设置界面,创建了密度为 1.05 g/cm^3 的聚苯乙烯颗粒,

选择表面注射类型,颗粒流速与毛细管入口流速设置为相等,持续时间设定为4 s,粒径分布设置为正态分布,且颗粒流具有恒定质量流量。边界条件参数设置如下:1)毛细管入口和饱和腔入口均设置为速度入口,温度和气压设定为标准状况下;2)冷凝管出口设置为压力出口,出口外部恒定一个标准大气压;3)所有流场壁面均设置为无滑动剪切条件,饱和腔和冷凝管的壁面温度分别设置为 45°C 和 10°C ,壁面材料为铝,厚度为2 mm。在初始化解面选择SIMPLE算法,压力方程采用标准离散格式,其余控制方程采用二阶迎风格式,计算时间步长设置为0.002 s,总步数设置为2 000步。

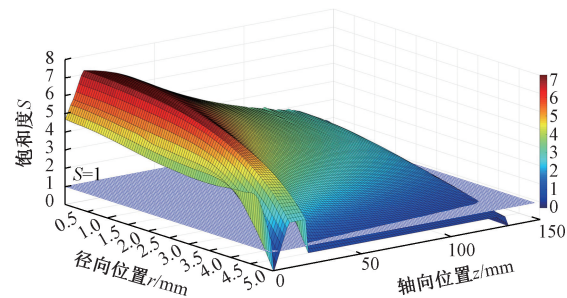
2 结果及分析

基于Fluent软件对粒子生长器的内流场参数分布进行仿真研究,并从3个方面对仿真结果进行分析。首先分析了在基本边界条件设置下的隔热段-冷凝管流场中的饱和度分布以及临界直径分布;随后在其他参数恒定不变的条件下,梯度降低毛细管流量与鞘流流量的比值,以研究流量比对流场中蒸汽质量分数、饱和度以及临界直径的影响;最后得到了理想条件下CPC的“粒径-计数效率”曲线,并分析了流量比对计数效率的影响。

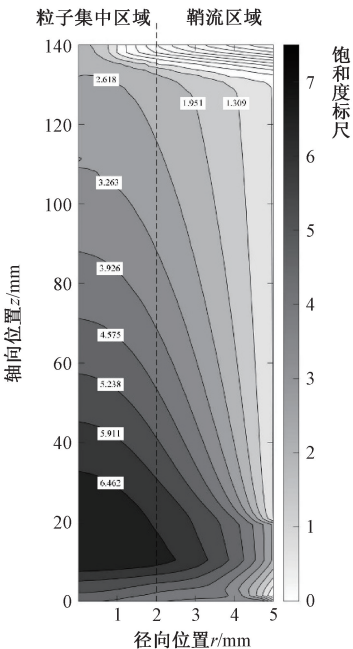
2.1 饱和度与临界直径的空间分布

隔热段-冷凝管流场中饱和度 S 的分布情况如图5所示。图5中零点为流场中心起始位置,由该位置分别沿径向方向以及轴向方向延伸形成两坐标轴,轴向方向大于130 mm的部分为冷凝管的锥形出口。图5(a)标出了饱和度 $S=1$ 的平面,工作液蒸汽在饱和度高于1时处于过饱和状态,此时的蒸汽以颗粒为凝结核发生异质冷凝现象,且饱和度越高,颗粒越容易被激活长大。图5(a)中饱和度峰值出现在隔热段与冷凝管交界处附近。图5(b)中虚线表示气溶胶颗粒的流动边界,鞘流很好地将气溶胶颗粒限制在隔热段-冷凝管流场轴心附近饱和度较高区域,在减小颗粒壁挂损失的同时增大颗粒的激活效率。

隔热段-冷凝管流场中的临界直径分布云图如图6所示,其中点线表示隔热段-冷凝管流场中临界直径 d_k 的等高线分布,最低临界直径值位置与最高饱和度值位置重合。当气溶胶颗粒的粒径大于临界直径时,颗粒被激活从而实现尺寸的增大。冷凝管壁面附近温度的不均匀分布导致了临界直径的波动变化,鞘流结构的存在避免了气溶胶颗粒进入该区域,从而提升了CPC的检测性能。图6中实线表示离散等高线的最大径向位置的临界直径曲线,星标示意性的给出了几个沿径向位置的离散最低临界直径值点。



(a) 隔热段-冷凝管流场饱和度分布函数
(a) Saturation distribution function of flow field in insulation-condensation section



(b) 隔热段-冷凝管流场饱和度分布云图
(b) Saturation distribution contour of flow field in insulation-condensation section

图 5 隔热段-冷凝管流场饱和度分布
Fig. 5 Saturation distribution of flow field in insulation-condensation section

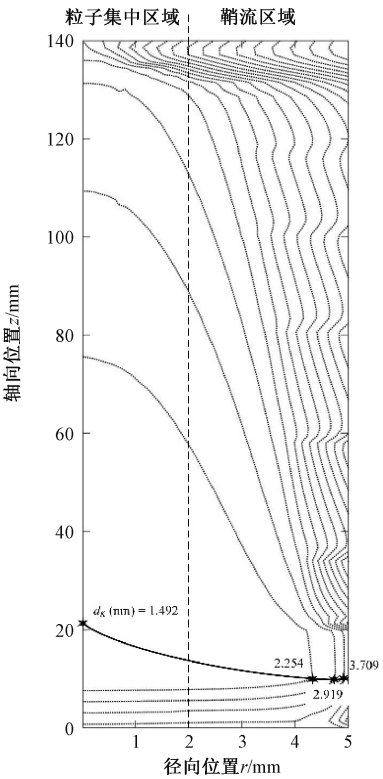


图 6 隔热段-冷凝管流场中的临界直径分布云图
Fig. 6 Critical diameter distribution contour of flow field in insulation-condensation section

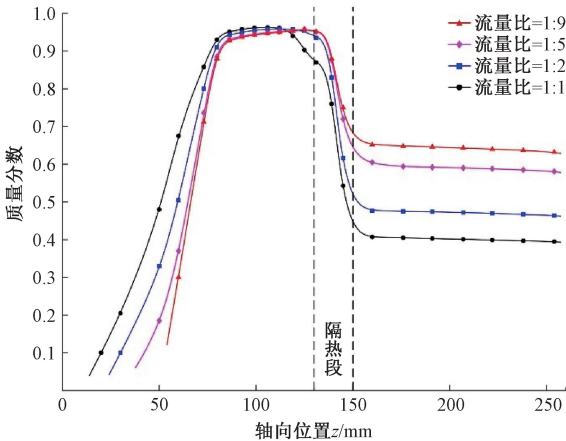


图 7 不同流量比时的工作液蒸汽质量分数分布函数
Fig. 7 Distribution function of vapor mass fraction of working fluids at different flow rates

2.2 流量配比的影响

在固定的几何条件以及流场参数下,研究毛细管流量与鞘流流量之比对生长器中颗粒生长条件的影响。采样气总流量恒定 300 mL/min 不变,毛细管流量与鞘流流量比梯度设置为 1:9、1:5、1:2、1:1,预测粒子生长器中工作液蒸汽质量分数、饱和度以及临界直径的分布情况。

工作液蒸汽由饱和腔中的工作液在 45℃ 加热下挥发产生,并由从饱和腔入口处的鞘流气携带进入隔热段和冷凝管中。从饱和腔入口开始依次经过隔热段和冷凝管流场的中心轴线上的蒸汽质量分数分布如图 7 所示。图 7 表明,流量比越高,即鞘流气流量所占比重越大,饱和腔中的蒸汽质量分数越小,分布函数曲线右移,隔热段

处蒸汽质量分数下降越慢,冷凝管中蒸汽质量分数越大。这是由于在工作液挥发速率保持恒定时,鞘流气流量越大,鞘流气携带饱和腔中的工作液蒸汽越多,工作液蒸汽随气流进入冷凝管中,使得冷凝管中的蒸汽质量分数增大。饱和腔末端与隔热段连接处位置的蒸汽质量分数受流量比影响很小,这是由于此处为饱和腔末端的 90° 拐角

位置,鞘流携带的工作液蒸汽会在此处大量聚集,蒸汽质量分数在 90% 以上。

由于气溶胶颗粒的异质冷凝生长仅可能在隔热段-冷凝管流场中发生,因此对隔热段和冷凝管中心轴线的饱和度分布进行了研究,如图 8 所示。图 8 表明,流量比的减小会导致饱和度的显著降低,这是由于随流量比减小所带来的蒸汽质量分数降低所导致的。饱和度的峰值出现在冷凝管的起始位置,与蒸汽质量分数的峰值位置并不一致,由于饱和度不仅受蒸汽质量分数影响,还与当前位置的饱和蒸汽压呈负相关关系,气流流经隔热段进入冷凝管起始位置时发生温度的骤降,导致该处饱和蒸汽压的减小,使得饱和度升高。

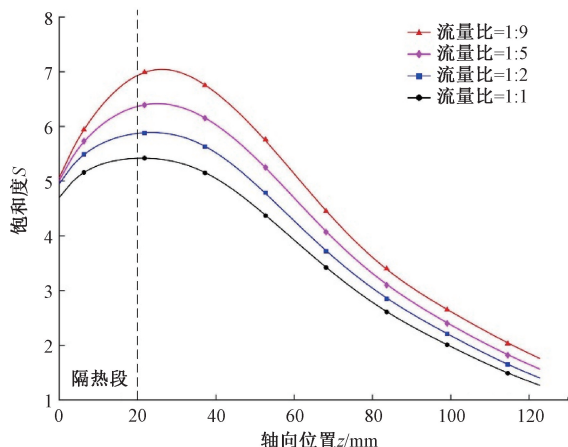


图 8 不同流量比时的饱和度分布函数

Fig. 8 Saturation distribution function at different flow rates

由图 6 可知,临界直径的峰值位置出现在隔热段与冷凝管交界处附近,且随冷凝管轴向位置的增加而增大。为了方便研究,以隔热段与冷凝管交界处的径向位置为横轴,研究了不同流量比时临界直径在流场径向方向上的分布,如图 9 所示。可以看到,随着流量比的减小,相同径向位置的临界直径增大,所能被激活的颗粒粒径下限对应应升高。图中虚线表示不同流量比时气溶胶颗粒流动的最大边界位置,流动边界线随着流量比的减小而右移,此时气溶胶颗粒扩散范围增大,颗粒会经过临界直径较大的位置,导致一些小粒径颗粒无法被激活长大。

以上实验证明增大流量比可以在一定程度上提高冷凝管中工作液蒸汽质量分数和饱和度,从而降低所能激活的颗粒粒径下限,提升 CPC 的检测性能。但在实际应用中,过高的流量比会破坏冷凝管中气流的层流状态,流场中的涡流以及气溶胶颗粒吸附在冷凝管壁上均会造成颗粒的损失;同时过低的毛细管流速会增加气溶胶颗粒在毛细管中的损失,降低 CPC 的实际计数效率;并且当流量比过高时,由于总流量较低,无法保证流量控制精

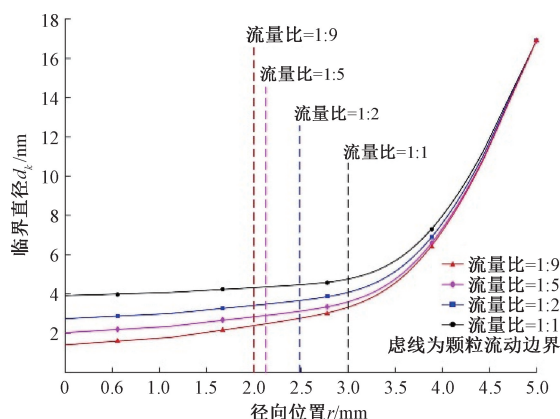


图 9 不同流量比时的临界直径分布函数

Fig. 9 Distribution function of critical diameter at different flow rates

度,流量配比即使发生极小的波动,其在反演计算数量浓度时都会产生巨大的偏差,影响检测结果。因此 CPC 中毛细管流量与鞘流流量比也不宜过高。

2.3 计数效率

本文考虑理想状态下,即粒子生长器中颗粒运输时不发生损失,且所有被激活的颗粒均能被光学检测元件成功检测到,此时 CPC 的计数效率等价于粒子生长器中颗粒的激活效率。在不同流量比下的 CPC 理论计数效率曲线如图 10 所示。

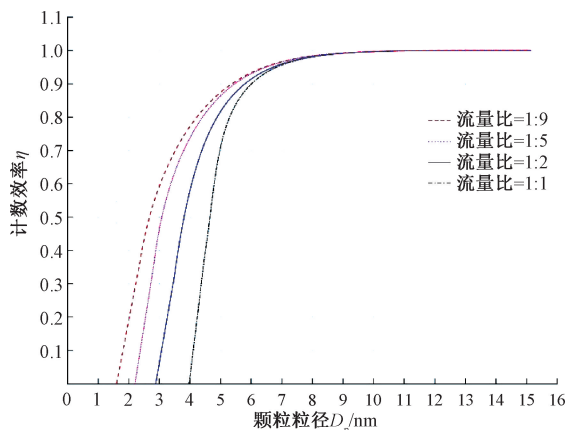


图 10 不同流量比时的理论计数效率

Fig. 10 Theoretical counting efficiency at different flow rates

由图 10 可知,当颗粒粒径高于 10 nm 时,流量比几乎对计数效率不造成影响,均为约 100% 的计数效率。当颗粒粒径低于 7 nm 时,4 种流量比情况下的计数效率均迅速下降,且流量比对计数效率影响显著。切割粒径(即 d_{50})指计数效率为 50% 对应的粒径大小,是 CPC 的一项极为重要的性能指标。图 10 中流量比为 1:9、1:5、1:2、1:1 时的切割粒径分别为 2.658、3.065、3.794、4.655 nm,

流量比越大,CPC 的切割粒径越低,对小粒径颗粒的计数效率越高。

3 计数效率实验验证

基于计算流体动力学 (computational fluid dynamics, CFD) 模拟中对 CPC 内粒子生长器的最优流量配比以及操作参数设置研究,设计加工了粒子生长器,并搭建了自研 CPC 测量系统。

粒子生长器的结构参数如表 1 所示,自研 CPC 测量系统主要包括粒子生长器和光学粒子计数器两大核心模块,还包含冷凝管制冷模块、饱和腔加热模块、流量控制模块等外围模块,如图 11 所示。根据模拟研究,分别设置冷凝管制冷模块和饱和腔加热模块的温度为 10℃ 和 45℃,采样总流量为 300 mL/min,并通过设置在鞘流旁路的限流孔将流量比控制在 1:9。

表 1 粒子生长器结构参数

Table 1 Structure parameters of the particle grower

mm				
部件名称	长度	内径	厚度	材质
饱和腔	130	50	3	铝
冷凝管	110	10	2	铝
隔热段	20	10	5	橡胶
毛细管	60	0.7	0.4	不锈钢

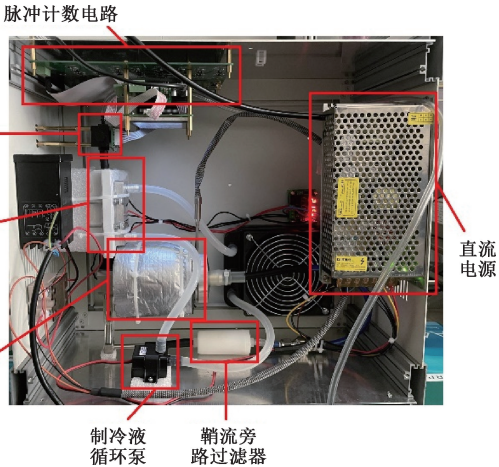


图 11 自研 CPC 测量系统

Fig. 11 The self-developed CPC measurement system

本文通过将自研 CPC 测量系统与已校准的 TSI 3775 CPC 进行对比,完成对自研 CPC 计数效率的校准验证。校准装置如图 12 所示,装置主要由气溶胶颗粒发生系统、颗粒物粒径分级系统以及颗粒物计数部分组成。压

缩空气经过 0.1 μm 高效过滤器去除颗粒杂质后通入雾化发生器中,雾化发生器中装有液体标准样品,在压缩空气的作用下液体标样雾化产生宽分布气溶胶颗粒,垂直干燥器及扩散干燥器对气溶胶气流进行除湿。除湿后的气溶胶颗粒在单级荷电装置中达到玻尔兹曼电荷平衡状态,后经差分电迁移分级器 (differential mobility analyzer, DMA) 对宽分布气溶胶颗粒进行筛分从而得到表面带有单一电荷的单分散气溶胶颗粒。通过洁净空气补气、限流孔混匀以及气溶胶分配器等技术手段,使得通入自研 CPC 系统以及 TSI 3775 CPC 的气溶胶气流保持相同流速和浓度,通过比较自研 CPC 的测量结果 C_{EUCPC} 以及 TSI 3775 CPC 的测量结果 C_{CPC} , 完成对自研 CPC 的校准,校准相对误差可以通过式 (8) 得出。

$$\Delta C = \frac{C_{EUCPC} - C_{CPC}}{C_{CPC}} \times 100\%$$

(8)

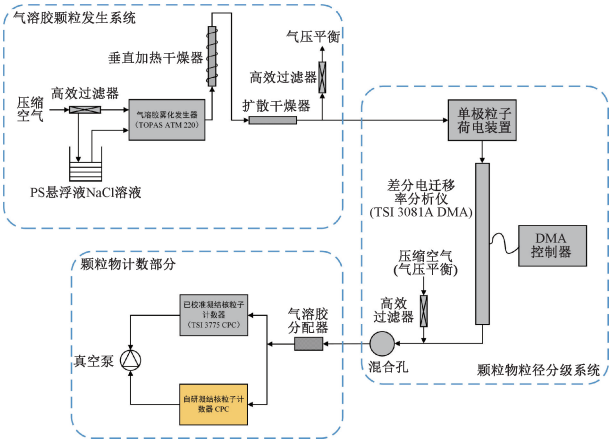


图 12 自研 CPC 校准装置

Fig. 12 Calibration device of the self-developed CPC

目前在《轻型汽车污染物排放限值及测量方法 (中国第六阶段)》标准中规定了移动源排气中颗粒粒径检测下限为 23 nm,但根据目前的发展趋势,在“国七”标准中粒径检测下限很可能会继续下调。因此在本文研究突破了 23 nm 的常规校准粒径下限,对自研 CPC 测量系统的 7~200 nm 粒径范围内超细颗粒的计数效率进行了验证。

由于不同于传统粒径范围内的校准,因此在本研究中基于图 12 的校准装置提出了一种新的气溶胶颗粒发生及校准方法。针对 23~200 nm 粒径范围内的校准,气溶胶雾化发生器中的液体标样为单分散聚苯乙烯乳胶标准粒子,选择了 23、40、50、70、102、142、200 nm 共 7 个测试点。针对 7~23 nm 粒径范围内的校准,雾化发生聚苯乙烯颗粒液体标样无法满足,因此本文提出一种“雾化-蒸发结晶”的气溶胶颗粒发生方法,操作为气溶胶雾化发

生器内装有预先配置的一定质量浓度的 NaCl 溶液作为液体标样,液体标样雾化生成液滴后在垂直加热干燥器内加热蒸发掉表面的水分从而生成 NaCl 晶体颗粒,随后 NaCl 晶体颗粒在 DMA 中完成粒径的筛分。

在“雾化-蒸发结晶”的气溶胶颗粒发生方法中,通过控制 NaCl 在超纯水中的质量浓度实现不同粒径颗粒的发生,原理为在 TOPAS ATM 220 气溶胶雾化发生器中,由于在发生器出口处配有颗粒撞击器,因此所发生液滴粒径被限制在 2 μm 以下,且呈现宽分布,根据液滴粒径以及期望得到的 NaCl 晶体颗粒粒径即可推算出所需配置 NaCl 溶液中的固含量,计算关系可由下式得出:

$$\rho = \frac{m_s}{V_l} = \frac{\rho_s V_s}{V_l} = \rho_s \left(\frac{D_s}{D_l} \right)^3 \tag{9}$$

式中: m_s 、 V_s 、 D_s 分别为 NaCl 晶体颗粒的质量、体积、直径; ρ_s 为固体 NaCl 密度; D_l 为雾化发生器发生液滴直径。以 $D_l = 1 \mu\text{m}$ 为例,当 $D_s = 10 \text{ nm}$ 时,所配置 NaCl 溶液的溶质质量浓度为 0.002 165 g/L。

在 7~23 nm 粒径段内选择 7、9、10、12、15、20 nm 共 6 个测试点,对自研 CPC 测量系统进行校准。经 DMA 对所发生 NaCl 晶体颗粒进行筛分后,得到的单分散气溶胶颗粒粒径分布如图 13 所示。按照所提出“雾化-蒸发结晶”的超细气溶胶颗粒发生方法,在 6 个测试点位下所发生气溶胶颗粒的单分散性较好,且浓度最少可达 $1\,000 \text{ cm}^{-3}$ 以上,完全满足自研 CPC 测量系统的校准需求。

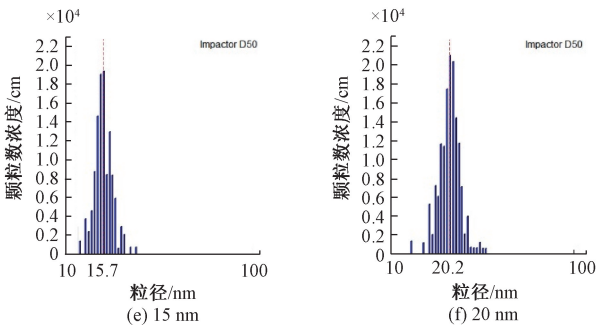


图 13 “雾化-蒸发结晶”法产生的气溶胶颗粒粒径分布
Fig. 13 Size distribution of the aerosol particles which is generated by the ‘atomization-evaporation crystallization’ method

根据上述校准方法,对自研 CPC 测量系统的 7~200 nm 粒径范围内超细颗粒的计数效率进行了验证,结果如图 14 所示。图 14 中虚线表示 CFD 模拟的理论计数效率曲线,星号表示自研 CPC 测量系统的实验计数效率校准结果,该计数效率可由下式计算得出:

$$\eta = \frac{C_{EUCPC}}{C_{CPC}} \times 100\% \tag{10}$$

由图 14 可知,在 7~200 nm 粒径范围内 13 个点位的测量结果中,最大校准相对误差出现在 7 nm 处,为 9%,其余 12 个点位的校准相对误差均低于 4%。自研 CPC 测量系统的计数效率校准结果与 CFD 模拟的理论计数效率曲线呈现高度相关性。

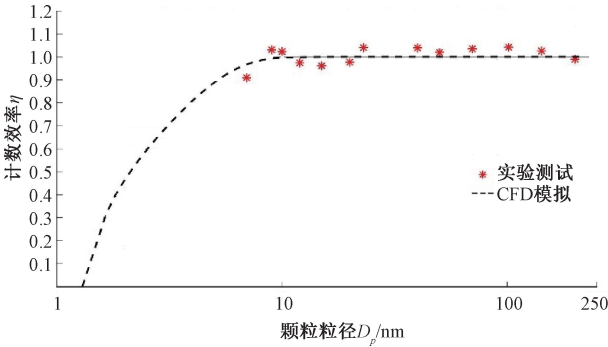
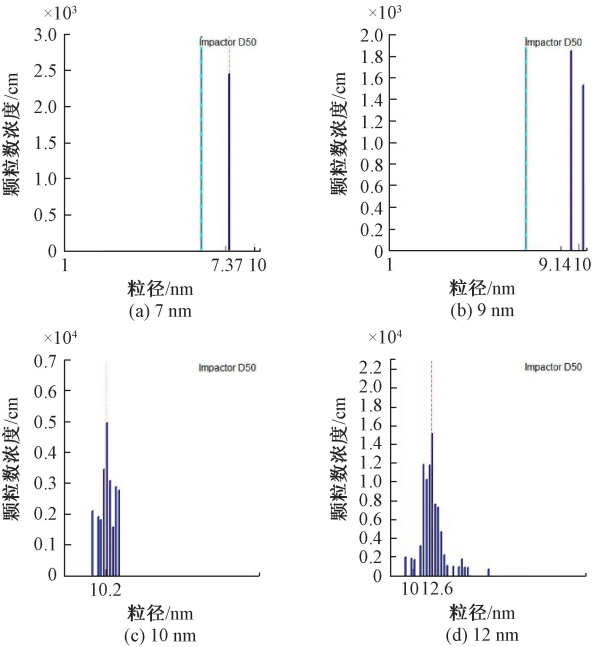


图 14 自研 CPC 实验计数效率与 CFD 模拟理论计数效率对比
Fig. 14 Comparison results of the counting efficiency of self-developed CPC by the experiment and CFD simulation

4 结 论

通过对层流型粒子生长器的结构尺寸进行设计建模,结合 CFD 模拟计算,对 CPC 粒子生长器流场中气流流动以及能量传输的情况进行了分析研究。首先研究了采样总流量为 300 mL/min、毛细管流量与鞘流流



量比为1:9时气溶胶颗粒生长区域中饱和度以及临界直径的空间分布,发现饱和度值在冷凝管流场起始位置的中心轴线处达到最大,并沿着轴向位置和径向位置的增加而逐渐降低,临界直径的变化趋势与饱和度相反;在同一轴向位置时,随径向位置增加饱和度降低、临界直径增大。冷凝管壁附近由于温度的不均匀分布导致了临界直径的波动变化,在鞘流结构的作用下,气溶胶颗粒被限制在冷凝管中心轴线处的饱和度较高区域流动,在减小气溶胶颗粒损失的同时防止气溶胶颗粒进入冷凝管壁附近的临界直径波动区域,保证了颗粒的生长效率。

探究了总流量固定的情况下,毛细管流量与鞘流流量比对粒子生长器中生长条件以及CPC检测性能的影响。结果显示,较低的流量比(即毛细管流量占比较高)会导致冷凝管内工作液蒸汽质量分数的显著下降,进而使得饱和度降低,临界直径升高;并且低流量比还会使得气溶胶颗粒具有更宽的扩散区域,此时气溶胶颗粒流动进入冷凝管边缘的高临界直径区域,造成一些小颗粒无法被激活生长,使得CPC计数效率降低。

最后基于CFD模拟研究结果,搭建了自研CPC测量系统以及校准装置,并提出了一种新的气溶胶颗粒发生及校准方法,对7~200 nm粒径范围内的气溶胶颗粒计数效率进行了验证。结果显示,自研CPC测量系统在13个点位的计数效率测量结果中,最大校准相对误差出现在7 nm处,为9%,其余12个点位的校准相对误差均低于4%。

本文的CFD模拟实验得出结论,基于理想条件下(即粒子生长器中颗粒运输时不发生损失,且所有被激活的颗粒均能被光学检测元件成功检测到)得出的,在实际情况中当流量比过高(即鞘流流量占比较高)时,冷凝管中气流的层流状态会遭到破坏,在涡流以及过低的毛细管流速的影响下气溶胶颗粒的损失率会显著升高;并且过高的流量对比对流量控制的精度及稳定性要求极高,微小的流量波动都会带来计数效率的巨大偏差。因此只有在合理范围内,适当提高毛细管流量与鞘流流量比,有助于提升CPC的检测性能。

参考文献

- [1] 申晋,郑刚,柏雪源,等. 基于动态光散射信号分形的颗粒测量技术研究[J]. 仪器仪表学报, 2004, 25(4): 421-423, 434.
SHEN J, ZHENG G, BAI X Y, et al. Study on dynamic light scattering of particles with fractal theory [J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2004, 25(4): 421-423, 434.
- [2] 刘红丽,张伟,李昌禧. 室内可吸入颗粒物浓度与粒径分布检测方法的研究[J]. 仪器仪表学报, 2009,

30(2): 340-344.

- LIU H L, ZHANG W, LI CH X. Detection of concentration and size distribution of indoor inhaled particulate matters [J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2009, 30(2): 340-344.
- [3] 钟琪,王文,王哲,等. 新型大气颗粒物自动换膜采样装置研究[J]. 电子测量与仪器学报, 2018, 32(4): 7-12.
ZHONG Q, WANG W, WANG ZH, et al. Research on automatic film-changing sampler for airborne particulate matter [J]. Journal of Electronic Measurement and Instrumentation, 2018, 32(4): 7-12.
- [4] WANG X L, CALDOW R, SEM G J, et al. Evaluation of a condensation particle counter for vehicle emission measurement: Experimental procedure and effects of calibration aerosol material [J]. Journal of Aerosol Science, 2010, 41(3): 306-318.
- [5] SIPILÄ M, LEHTIPALO K, KULMALA M, et al. Applicability of condensation particle counters to measure atmospheric clusters [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, 8(14): 4049-4060.
- [6] MCMURRY P H. The history of condensation nucleus counters [J]. Aerosol Science and Technology, 2000, 33(4): 297-322.
- [7] STOLZENBURG M R, MCMURRY P H. An ultrafine aerosol condensation nucleus counter [J]. Aerosol Science and Technology, 1991, 14(1): 48-65.
- [8] SEM G J. Design and performance characteristics of three continuous-flow condensation particle counters: A summary [J]. Atmospheric Research, 2002, 62(3-4): 267-294.
- [9] KANGASLUOMA J, ATTOUI M. Review of sub-3 nm condensation particle counters, calibrations, and cluster generation methods [J]. Aerosol Science and Technology, 2019, 53(11): 1277-1310.
- [10] CHEN L F, MA Y G, GUO Y J, et al. Quantifying the effects of operational parameters on the counting efficiency of a condensation particle counter using response surface design of experiments (DoE) [J]. Journal of Aerosol Science, 2017, 106: 11-23.
- [11] TAKEGAWA N, SAKURAI H. Laboratory evaluation of a TSI condensation particle counter (Model 3771) under airborne measurement conditions [J]. Aerosol Science and Technology, 2011, 45(2): 272-283.
- [12] MORA J F D L. Effect of the finite width of the temperature transition in diffusive condensation particle counters [J]. Aerosol Science and Technology, 2020, 54(12): 1492-1502.

- [13] BALTZER S, ONEL S, WEISS M, et al. Counting efficiency measurements for a new condensation particle counter [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2014, 70: 11-14.
- [14] LEWIS G S, HERING S V. Minimizing concentration effects in water-based, laminar-flow condensation particle counters [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2013, 47(6): 645-654.
- [15] THOMAS J M, CHEN X, MAIBER A, et al. Differential heat and mass transfer rate influences on the activation efficiency of laminar flow condensation particle counters [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2018, 127: 740-750.
- [16] KIWULL B, WOLF J C, NIESSNER R. Response characteristics of PMP compliant condensation particle counters toward various calibration aerosols [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2015, 49(2): 98-108.
- [17] REINISCH T, RADL S, BERGMANN A, et al. Effect of model details on the predicted saturation profiles in condensation particle counters [J]. *Advanced Powder Technology*, 2019, 30(8): 1625-1633.
- [18] SAGHAFIFAR H, KURTEN A, CURTIUS J, et al. Characterization of a modified expansion condensation particle counter for detection of nanometer-sized particles [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2009, 43(8): 767-780.

作者简介



郭皓天, 2019 年于西安邮电大学获得学士学位, 2022 年于太原理工大学获得硕士学位, 现为中国科学技术大学博士研究生, 主要研究方向为气溶胶中颗粒物测量技术研究。

E-mail: 13279401602@163.com

Guo Haotian received his B. Sc. degree from Xi'an University of Posts & Telecommunications in 2019, and M. Sc. degree from Taiyuan University of Technology in 2022. He is a Ph. D. candidate at University of Science and Technology of China now. His main research interests include aerosol particle measurement technology.



刘俊杰 (通信作者), 1998 年于太原理工大学获得学士学位, 2003 年于北京化工大学获得硕士学位, 现为中国计量科学研究院副研究员, 主要研究方向为颗粒物计量技术和气溶胶中颗粒测量技术研究。

E-mail: liujj@nim.ac.cn

Liu Junjie (Corresponding author) received his B. Sc. degree from Taiyuan University of Technology in 1998, and M. Sc. degree from Beijing University of Chemical Technology in 2003. He is currently an associate research fellow at National Institute of Metrology. His main research interests include metrology technology research of particulate matter and aerosol particle measurement technology.