DOI: 10. 19650/j. cnki. cjsi. J2209156

# 柴油发动机超细颗粒物数量检测方法研究进展\*

关 泽1,范晨阳1,王站成1,王 旭1,付 政2

(1.河南科技大学车辆与交通工程学院 洛阳 471003; 2.洛阳西苑车辆与动力检验所有限公司 洛阳 471000)

摘 要:柴油机的颗粒物排放是城市大气超细颗粒物的主要来源,对环境质量和人体健康有严重的负面影响。近年来,排放法规对颗粒物排放的控制愈加严格,并对颗粒数量测量仪器的性能提出了更高的要求。总结了 5 种颗粒数量测量仪器的测量原 理和特点,在特定测量需求和场合下对这些设备的性能进行了对比并针对下一阶段排放法规的测量需求,分析了以上测量设备 的适用性。结果表明,冷凝颗粒计数器对粒径>10 nm 颗粒具有更快的响应速度,能够满足未来法规中对城市 RDE 测试循环的 需求。然而,冷凝颗粒计数器无法测量粒径分布,不适用于针对 10~23 nm 颗粒控制技术的研发。但发动机排气粒度仪可给出 粒径低至 5.6 nm 颗粒的粒径分布,可为冷凝颗粒计数器的检测结果提供补充信息。

关键词:移动源颗粒物;颗粒数量检测;粒径分布;排放法规

中图分类号: TH89 文献标识码: A 国家标准学科分类代码: 470.30

# Review on determining ultra-fine particle number emissions from modern diesel engines

Guan Ze<sup>1</sup>, Fan Chenyang<sup>1</sup>, Wang Zhancheng<sup>1</sup>, Wang Xu<sup>1</sup>, Fu Zheng<sup>2</sup>

(1. College of Vehicle and Traffic Engineering, Henan University of Science and Technology, Luoyang 471003, China;
 2. Luoyang Xiyuan Vehicle and Power Inspection Institute Co., Ltd., Luoyang 471000, China)

**Abstract**: Particle emissions from diesel engines are the primary contributor to the ultra-fine particle in the urban atmosphere, and have severely reverse effects on environmental quality and human health. In recent years, particle emission is strictly regulated in the emission legislations, which requires the higher performance of instruments for particle number measurement. In this article, five particle number measuring instruments are summarized in their measuring principles and features. Then, the performances of those instruments under specific requirements and operating conditions are compared. Finally, the accessibility of those instruments is analyzed for the measurement requirements of the upcoming emission regulations. The result shows that the condensation particle counter (CPC) has a faster response to detection of >10 nm particle number emissions, which can meet the test requirements of the urban RDE test cycle and  $10 \sim 23$  nm in future regulations. However, CPC cannot measure the particle size distribution, so it is not suitable for the development of controlling technology for  $10 \sim 23$  nm particles. The engine exhaust particle sizer (EEPS) can give a size distribution of as small as 5.6 nm particles, which may provide complementary information for the CPC detection for the upcoming emission legislations. **Keywords**: particle from mobile source; particle size distribution; particle number detection; emission regulation

0 引 言

柴油机的颗粒物排放是城市大气超细颗粒物的重要 来源之一,且对人体健康和大气质量有严重的负面影 响<sup>[14]</sup>。在城市繁忙的道路上,机动车尾气的颗粒物几分 钟,甚至几秒钟就会被人体吸入<sup>[5]</sup>。人体长时间暴露在 高浓度颗粒物的环境内,很容易导致呼吸道疾病的发生, 如急性下呼吸道疾病、脑血管病、缺血性心脏病和肺癌 等<sup>[6-8]</sup>。欧洲清洁空气项目调查结果显示,每年都会有 35万人由于 PM<sub>2.5</sub>(粒径<2.5 μm 的颗粒物)的影响而过 早死亡<sup>[9]</sup>。碳氢燃料的不完全燃烧是导致机动车颗粒物

收稿日期:2022-01-07 Received Date: 2022-01-07

\*基金项目:国家自然科学基金(52006054)、河南省重点研发与推广专项(科技攻关)(212102210331)项目资助

(particulate matter, PM) 排放的主要原因<sup>[10]</sup>。随着发动 机缸内燃烧(高压共轨技术、废气再循环系统、涡轮增压 技术和电控喷射技术等)和后处理技术(颗粒捕集器和 柴油机氧化催化转化器等)的发展<sup>[11]</sup>.柴油机尾气中的 颗粒物的质量已经得到了显著的降低[10]。但已有研究 表明,柴油机尾气中的颗粒绝大多数是粒径<100 nm 的 超细颗粒<sup>[12]</sup>。因此,颗粒物质量浓度的降低并不意味着 其数量浓度也得到了有效控制。根据 Kittelson 等<sup>[13]</sup>的 报告,使用加州柴油的轻载 ISM 卡车,运行温度下降 10℃时,颗粒物的质量虽有所降低,但超细颗粒的数量浓 度会增加近10倍,颗粒物质量的显著降低和超细颗粒的 增加紧密相关,小粒径的颗粒对于颗粒物质量的影响不 大<sup>[14]</sup>。而且小粒径的颗粒要比大粒径的颗粒对人体的 威胁更大:1) 小粒径的颗粒物可长时间漂浮在空气 中[15]:2)小粒径颗粒的相对表面积更大,所以可以吸收 更多的有害物质[10,15-16];3)更小的颗粒物更容易进入人 体肺部,渗入血液,对人体危害甚大[15,17-18]。因此,目前 世界卫生组织已经将小粒径颗粒列为"致癌物"[3,19]。

近年来,国内外的排放法规对机动车的排放控制变 得更加严格。以我国重型柴油车用发动机排放法规为 例,相比于第5阶段排放法规,在稳态标准测试循环下, 第6阶段的排放法规对颗粒物质量浓度的排放限值要求 由0.02g/kW·h降低至0.015g/kW·h。而且自国六之 后,我国的排放法规增加了对颗粒物数量浓度排放的 限制,排放限值为8.0×10<sup>11</sup>#/kW·h。然而,相较于颗粒 物的质量浓度排放控制力度,国内外对于颗粒物数量 (particle number, PN)浓度排放的控制仍远远不够,主 要原因如下:1)国内外关于 PN的检测技术尚不成 熟<sup>[20]</sup>;2)排放法规对车辆颗粒物数量的限制刚刚起 步,其相关排放控制技术仍不成熟。相应地,PN 排放 的测量和控制技术是目前机动车厂商和相关科研机构 的研究重点<sup>[21]</sup>。

作为大气气溶胶的主要来源,发动机颗粒物的结构 特征与其他来源的气溶胶类似,而后者的相关检测技术 已经得到了长足发展。城市大气中的核态和团聚态颗粒 通常来源于道路车辆的尾气和冷凝的过饱和蒸汽,而粗 颗粒来源于土壤等自然环境,这种差异往往体现在颗粒 物的粒径分布上<sup>[22-23]</sup>。2011 年 Gu 等<sup>[24]</sup>使用电动低压 撞击器对汽油机的尾气颗粒进行了检测,发现其粒径范 围是 38.88~145.55 nm。Geng 等<sup>[25]</sup>在 2021 年用扫描迁 移率粒子谱仪测量不同负荷下柴油机的尾气颗粒,发现 颗粒的粒径范围为 13.95~214.84 nm。Afshari 等<sup>[26]</sup>测 量蜡烛燃烧产生的颗粒时,发现颗粒粒径范围约为 20 nm~1.0 μm。2016 年,Zhang 等<sup>[27]</sup>使用扫描迁移率粒 子谱仪其对武汉市 4 个季节的大气气溶胶进行了测量, 发现气溶胶的粒径范围是 15.02~637.95 nm。由此可 见,发动机排放颗粒物的粒径包含在其他来源的气溶胶的粒径测量范围之内。因此,目前对于发动机排气颗粒的粒径和数量浓度检测可借鉴以上测量技术。在测量过程中,通过测量参数和设备类型的合理选择,即可保证对发动机 PN 较高的检测效率和检测精度。

本文分析了大气环境领域 PN 测量仪器的特点,在 特定场合下对仪器进行了性能对比,并从这些仪器中挑 选出了适合柴油机颗粒数量检测和满足下一阶段排放法 规需求的检测仪器。本文研究结果可为 PN 检测仪器用 户,相关科研人员和法规制定者提供一定的理论依据。

# 1 常用的 PN 检测技术分析

目前常用于 PN 检测的仪器有冷凝颗粒计数器 (condensation particle counter, CPC)、微分迁移率分析仪 (differential mobility analyzer, DMA)、扫描迁移率粒子谱 仪(scanning mobility particle sizer, SMPS)、发动机排气粒 度仪(engine exhaust particle sizer, EEPS)和电动低压撞 击器(electrical low pressure impactor, ELPI)。各个仪器 原理不尽相同,优缺点各异。

### 1.1 冷凝颗粒计数器

冷凝颗粒计数器主要结构有饱和器,冷凝管和光学 检测器件,基本结构如图1所示。





气溶胶首先经过饱和器,在恒温的饱和器中与蒸发的冷凝剂(一般为丁醇等挥发性物质)充分接触,直至达到饱和。随后,被测样品通入恒温的冷凝管(温度低于饱和器温度),冷凝剂在气溶胶颗粒表面凝结,使颗粒进一步长大至微米级别,以达到光学仪器的检测范围。经以上预处理后,气溶胶样品通过管道进入光学仪器内进行检测<sup>[28]</sup>。通常 CPC 有两种计数模式:1)单一计数模式, 一般适用于低于一定颗粒浓度(Agarwal 等<sup>[28]</sup>所研发的 CPC 为1000 #/cm<sup>3</sup>)的情况;2)光度模式,适用于更高的 颗粒浓度。CPC 有如下两个优点:1)响应速度快,有较 短的响应时间,美国 TSI 公司的 3785 型 CPC 最快响应时 间可达 2 s;2)携带方便,有许多手持式和便于携带的 CPC,可直接读取和采样<sup>[30]</sup>,如日本加野麦克斯公司的手 持式冷凝颗粒计数器(3800, Kanomax)便具备易于携带 的优点。CPC 有如下 3 个缺点:1)无法提供待测样品的 粒径分布,CPC 可以给出其可检测粒径范围内的颗粒数 量,但无法给出相应的粒径分布<sup>[31]</sup>;2)测量时必须保证 设备水平。CPC 设备倾斜时,吸附在多孔介质中的冷凝 剂会发生泄露,并有一定可能进入光学计数模块,影响颗 粒计数结果<sup>[30]</sup>;3)因为 CPC 运行过程中冷凝剂会有一 定的消耗,所以操作人员需按时补充冷凝剂,充当冷凝剂 的丁醇具有刺激性气味,这会令操作人员感到不适<sup>[30]</sup>。 表 1 所示为使用 CPC 检测气溶胶样品的实验数据。从 表 1 数据可以看出,CPC 可测量粒径>10 nm 气溶胶的数 量浓度。在 Zheng 等<sup>[32]</sup>和 Giechaskiel 等<sup>[33]</sup>的研究中,由 于 CPC 仪器型号的不同,CPC 可以有效的测量柴油机尾 气颗粒中粒径>23 nm 的颗粒。同时,相对于柴油机颗 粒,大气气溶胶粒径更大,可达到 μm 级别。

表 1 冷凝颗粒计数器检测气溶胶颗粒样品示例 Table 1 Examples of aerosol particle samples detected by condensation particle counter

| 文献     | <b>於</b> 劉 花 日                     | 测量参数数据(范围)   |              |  |
|--------|------------------------------------|--|--------------|--|
|        | T型 (7型 T+ 日日                       | 总数量浓度范围  | 检测粒径范围       |  |
| 文献[32] | 卡特彼勒柴油机在欧洲瞬态测试循环下排放的尾气颗粒           | $1.0 \times 10^2 \sim 3.2 \times 10^4 $ #/cm <sup>3</sup>  | >23 nm       |  |
| 文献[33] | 两辆欧六-B的柴油机,两辆欧六-B的汽油机和两辆欧五汽油机的尾气颗粒 | 1. $1 \times 10^{10} \sim 1.4 \times 10^{12} $ #/km        | >23 nm       |  |
| 文献[34] | CH4和C2H4燃烧产生的颗粒                    | -  | >13.5 nm     |  |
| 文献[35] | CE-电喷雾系统产生的醋酸铵气溶胶                  | 2. $6 \times 10^3 \sim 1.6 \times 10^4 $ #/cm <sup>3</sup> | 1.6~200 nm   |  |
| 文献[36] | 教室内外的气溶胶颗粒                         | $5\ 200 \sim 26\ 000\ \text{#/cm}^3$                       | 6 nm~5 μm    |  |
| 文献[26] | 燃烧蜡烛产生的颗粒                          | 2. $41 \times 10^5 $ #/cm <sup>3</sup>                     | 20 nm~1.0 μm |  |

自 1980 年成功商用化以来,随着 CPC 的检测方法 和应用技术的不断优化和改进<sup>[28]</sup>,其测量精度和稳定性 都有了极大的提升<sup>[37-38]</sup>。目前针对 CPC 的改进方向 如下。

1)保证仪器测量稳定性的同时持续提高计数效率。

2)降低 CPC 的截止尺寸(cutoff diameter,检测效率达 50%时对应的迁移率直径<sup>[39]</sup>)。截止尺寸越小,反映 CPC 对小粒径颗粒的检测效率越高,粒径检测下限越小。

提高 CPC 的计数效率的措施主要有两种。1)采样稀释,由于采样气流的颗粒物数量浓度过大会降低 CPC 设备中冷凝剂的过饱和度,影响 CPC 的计数效率。因此,对采样气流稀释来降低颗粒物的浓度,可以在一定程度上降低颗粒浓度对计数效率的影响<sup>[29]</sup>;2)结构优化,McMurry和 Stolzenburg 对 CPC(3020,美国 TSI 公司)的采样口进行了改造,降低了采样损失,并采取鞘气结构,将采样气流约束在冷凝管最高饱和度的部分<sup>[40]</sup>,从而使 CPC 对 3 nm 颗粒的计数效率提高至约 50%<sup>[41]</sup>。

针对降低 CPC 截止直径的方法,相关研究结论主要 集中在如下两方面:1)样品预处理方法改进,如 Saghafifar等<sup>[37]</sup>提出的膨胀型冷凝颗粒计数器(expansion condensation particle counter, ECPC),该设备在光学检测 部分(ECPC 中的颗粒在此处过饱和并长大)后添加了一 个膨胀室,通过改变膨胀室快速膨胀后的压降,进而改变 冷凝颗粒的过饱和度,最终实现低至 2.5 nm 的截止尺 寸,另外,美国 TSI 公司的丁醇型超细冷凝颗粒计数器采 用了毛细管-鞘状的结构同样将 CPC 检测的截止尺寸降 低至 2.5 nm<sup>[38]</sup>;2)光学检测方法优化,如 Wang 等<sup>[42]</sup>对 CPC 的检测部分开发了高速光学粒子检测模块,提高了 CPC 的检测效率,可以对粒径>8 nm 的颗粒检测效率提 高到 90%以上。

#### 1.2 微分迁移率分析仪

微分迁移率分析仪是利用电迁移率分析方法测量颗 粒粒径分布的仪器<sup>[43]</sup>,DMA的基本结构如图 2 所示。

DMA 首先利用气溶胶充电器(通常使用双极充电器,利用氪-85、钋-210 和镅-241 等放射源的放射性衰变,产生等量正负离子,对气溶胶颗粒充电)使气溶胶带电<sup>[44]</sup>,然后利用氮气将颗粒引入内外同心的圆柱筒中,外圆筒接地,内圆筒接负电。带电气溶胶和氮气从圆筒上部进入两筒间的中心区域,带负电荷的颗粒被排斥到外圆筒上,不带电荷的颗粒从底部排出,而带正电荷的颗粒会在引力的作用下向内圆筒偏移,不同电迁移率的颗粒有不同的偏移轨迹<sup>[30]</sup>。内圆筒底部为采样狭缝,只有具有一定电迁移率的颗粒才会进入采样狭缝,其余颗粒要么沉积在内外圆筒上,要么排出 DMA<sup>[45]</sup>。DMA 的内外圆筒之间的电压导致颗粒发生不同程度偏移,进而决定进入采样狭缝的颗粒的粒径范围,不同电压会导致不



图 2 微分迁移率分析仪的基本结构<sup>[46]</sup> Fig. 2 Basic structure of differential mobility analyzer

同粒径范围的颗粒进入采样狭锋,内外筒之间电压大小 的选择对于颗粒的检测尤为重要[17,23]。因此,当改变内 外圆筒之间的电压时,进入采样狭缝颗粒的粒径大小也 不尽相同,通过逐渐改变内外圆筒的电压,可以筛选出不 同粒径的颗粒<sup>[44]</sup>。DMA 的优点如下:1)兼容性好,可连 接其他颗粒技术设备,如 CPC 和气溶胶静电计等:2) 触 摸屏,图形用户界面(graphical user interface, GUI)友好; 3)可连续快速扫描待测样品粒径范围(30 s)。DMA的 缺点如下:1)直径<5 nm 的颗粒无法进行分类<sup>[43]</sup>,由于 气溶胶流动的通道相对较长,布朗扩散沉积导致小粒径 的颗粒大量流失[47]:2) 气溶胶充电器的原理是使用氪-85 等放射源的衰变对颗粒进行充电,这有可能会发生辐 射污染,所以需要更多的保护措施防止操作者和环境受 到辐射污染。表2为研究人员使用 DMA 检测气溶胶样 品的部分实验数据。从表2的数据可以看出,DMA 可以 在检测颗粒物数量浓度的同时,并给出对应的粒径分布。 环境气溶胶粒径较大, Amanatidis 等<sup>[48]</sup>使用 DMA 测量的 环境气溶胶粒径范围最大约 500 nm, 而颗粒发生器产生 的气溶胶粒径多在100 nm 左右。

表 2 微分迁移率分析仪检测颗粒物样品示例 Table 2 Examples of aerosol particle samples detected by differential mobility analyzer

| 文献     | 检测样品             | 测量参数数据(范围)                                     |           |   |                          |  |
|--------|------------------|--|-----------|---|--------------------------|--|
|        |                  | 总数量浓度范围/ (#/cm <sup>3</sup> )                  | 粒径分布(PSD) |   |                          |  |
|        |                  |  | 检测粒径      | 峰值数量                                      | 峰值对应                     |  |
|        |                  |  | 范围/nm     | 浓度/(#/cm <sup>3</sup> )                   | 粒径/nm                    |  |
| 文献[49] | 颗粒发生器产生的聚苯乙烯球颗粒  | 9. $1 \times 10^9 \sim 1.1 \times 10^{12}$     | 10~200    | -   | 60.39±0.63,<br>101.8±1.1 |  |
| 文献[48] | 加州理工学院的环境气溶胶     | 9. $81 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4$       | 10~500    | 2. $13 \times 10^4 \sim 4.34 \times 10^4$ | 21~45.64                 |  |
| 文献[50] | 颗粒发生器产生的钨颗粒      | -  | 3~21.29   | -   | 9.38~9.86                |  |
| 文献[51] | 蒸发产生的纳米级银颗粒      | -  | 3~30      | $3.07 \times 10^4$                        | 11.89                    |  |
| 文献[52] | 颗粒发生器产生的聚苯乙烯胶乳颗粒 | -  | 20~80     | 4. $87 \times 10^3$                       | 33.3                     |  |
| 文献[53] | 加热蒸发产生的的带电银颗粒    | 2. $0 \times 10^{6} \sim 5. \ 0 \times 10^{6}$ | 1~80      | 1. $52 \times 10^4 \sim 2.85 \times 10^5$ | 14. 83 ~ 34. 72          |  |

DMA 很早便被用于颗粒数量浓度的检测。由于传统 DMA 较小的样气流速与鞘气流速比导致的检测数据的低分辨率<sup>[54]</sup>。针对此问题,近年来针对传统 DMA 进行结构改进,产生了如快速扫描微分迁移率分析仪(fast scanning differential mobility analyzer, FDMA),周期性聚 焦微分迁移率分析仪<sup>[54]</sup>(periodic focusing differential mobility analyzer, PFDMA),Spider DMA<sup>[48]</sup>和差分迁移率 谱仪(differential mobility spectrometer, DMS),显著提高 了设备的检测灵敏度和分辨率。例如,DMS 在原有 DMA 基础上进行了改进,DMS 仍使用电迁移率的方法对颗粒 进行分类检测,如图 3 所示,DMS 有气溶胶充电器、带高 压的分类柱和检测部分构成,利用气溶胶单极充电器对 气溶胶充电,带高压的分类柱使颗粒发生不同程度的偏 移,落到连接静电计的外管上,由静电计测量电荷大小, 进而得出颗粒数量等信息<sup>[55-56]</sup>。

#### 1.3 扫描迁移率粒子谱仪

扫描迁移率粒子谱仪通常由微分迁移率分析器和冷凝颗粒计数器组成,DMA 根据颗粒的迁移率直径对颗粒进行筛选,CPC 对筛选出的颗粒进行光学检测<sup>[48]</sup>。 SMPS 的基本结构如图 4 所示。

双极充电器(或者电荷中和器)对气溶胶进行充电, 最终达到电荷平衡,部分气溶胶经过充电后会是多电



图 3 微分迁移率谱仪的基本结构<sup>[55]</sup>







荷<sup>[45]</sup>。然后 DMA 筛选出一定粒径范围内的颗粒,通过 采样狭缝将颗粒排出。经过采样狭缝排出的颗粒被引入 到 CPC 中. CPC 对其进行光学的计数。SMPS 相对于其 他测量仪器有以下优点:1)可以提供颗粒样品的粒径分 布等信息<sup>[30]</sup>;2)可检测粒径范围广,从7~1000 nm 不 等<sup>[30,45]</sup>;3)高分辨率<sup>[57]</sup>,SMPS(3936,TSI)的分辨率为 162 个通道。同时, SMPS 的缺点如下: 1) 与 CPC 类似, 冷凝剂的泄露会影响仪器的测量,并且冷凝剂需要由操 作人员定期进行补充;2)与 CPC 相比, SMPS 体积庞大且 相当重,单位重量可达28 kg,这大大限制了 SMPS 的可移 动性,SMPS 更适合测量恒定位置的颗粒排放<sup>[30]</sup>:3)同其 他测量仪器相比,SMPS 的响应时间较长,所以无法给出 颗粒的实时信息<sup>[30]</sup>, SMPS 的响应时间一般至少 30 s<sup>[57-58]</sup>, 而实际响应时间的快慢通常取决于通道的数 量和 CPC 的响应时间<sup>[59]</sup>:4) SMPS 能检测较宽范围内的 颗粒,但对于粒径<15 nm 的颗粒的检测仍有较大的不确 定度<sup>[60]</sup>。表 3 为使用 SMPS 检测气溶胶样品的实验数 据。从表3的数据可以看出,柴油机尾气颗粒峰值数量 密度对应的粒径范围分布范围较广,在5.13~190.12 nm 范围内,这可能来自于柴油机运行工况的差异。相对应 地,颗粒发生器生成的 NaCl 气溶胶峰值浓度对应粒径在 相对较窄的分布范围(36.22~50.71 nm)。

|        | 检测样品                 | 测量参数数据(范围)                                    |              |  |                                     |  |
|--------|----------------------|---|--------------|--|-------------------------------------|--|
| 文献     |                      | 总数量(浓度)范围/ -<br>(#/cm <sup>3</sup> )          | 粒径分布(PSD)    |  |                                     |  |
|        |                      |   | 检测粒径         | 峰值数量   | 峰值对应                                |  |
|        |                      |   | 范围/nm        | 浓度/(#/cm³)   | 粒径/nm                               |  |
| 文献[61] | 颗粒发生器产生的多分散 NaCl 气溶胶 | -   | 5~1 000      | 2. $2 \times 10^4 \sim 2.63 \times 10^4$   | 36. 22~50. 71                       |  |
| 文献[62] | 32% 额定负荷下柴油机的尾气颗粒    | -   | 3~280        | 1 715.09~2.17 $\times$ 10 <sup>9</sup>   | 5.13~97.72                          |  |
| 文献[63] | V-8 自然吸气柴油机的尾气颗粒     | -   | 15.65~618.97 | 7. $68 \times 10^3 \sim 2.13 \times 10^5$  | 42.85~76.2                          |  |
| 文献[64] | 日本都市区收集到的气溶胶         | 8. $5 \times 10^3 \sim 4.5 \times 10^4$       | 10~487       | -  | -                                   |  |
| 文献[65] | 柴油车排放的的尾气颗粒          | 4. $2 \times 10^{16} \sim 2.0 \times 10^{17}$ | 5.4~198      | 2. $4 \times 10^{10} \sim 9.83 \times 10^{10}$<br>1. $38 \times 10^7 \sim 4.1 \times 10^9$ | 10. 73 ~ 19. 59<br>68. 98 ~ 190. 12 |  |
| 文献[66] | 四季台北交通公路旁的气溶胶        | $1.1 \times 10^4 \sim 1.7 \times 10^4$        | 10~560       | $1.0 \times 10^3 \sim 8.0 \times 10^4$   | -                                   |  |
| 文献[67] | 室内采集到的气溶胶            | 6 100~12 000                                  | 10~420       | 896. 27~1 684. 65<br>846. 47~1 875. 52<br>423. 24  | 15,37,116                           |  |

表 3 扫描迁移率粒子谱仪检测颗粒物样品示例 Table 3 Examples of aerosol particle samples detected by scanning mobility particle sizer

颗粒在 DMA 中分类所需的时间,在 CPC 中快速长 大的时间和 CPC 计数的能力限制了 SMPS 的响应速度。 近年来出现了大量针对提高 SMPS 检测效率的相关研究 和技术<sup>[68]</sup>。Shah 等<sup>[68]</sup>通过改进 CPC 的结构,缩短颗粒 在 CPC 的冷凝器中的长大时间,可使 SMPS 的响应速度 大幅提升。其改进原理为:采用混合 CPC(mixing CPC, mCPC),使低温采样气流与丁醇快速绝热混合,实现较高的混合均匀性,最终大幅缩短颗粒的长大时间。改进后的 SMPS 采用较短的扫描时间(≥2.5 s)时,其颗粒粒径分布测量效果即可达到与传统 SMPS 采用 300 s 扫描时

间相一致的水平。另外,经过改进后的 SMPS 能够基本 能够满足重型汽油和柴油车用发动机瞬态测试工况(US Tier-2)颗粒物粒径分布的测量需求<sup>[64-69]</sup>。

#### 1.4 发动机排气粒度仪

发动机排气粒度仪的工作原理和 SMPS、快速迁移率 粒度分析仪(fast mobility particle sizer, FMPS)相似<sup>[70]</sup>, EEPS 主要由单极充电器(unipolar charging, UC),电迁移 率分类器(electrical mobility classification, EMC)和静电 计组成<sup>[44]</sup>。EEPS 的基本机构如图 5 所示。





首先,颗粒先由负极充电器施加负电荷,以减少正 电荷粒子的数量,并防止正电荷充电器的充电过度,之 后正电荷充电器对颗粒进行充电<sup>[44]</sup>。充电后的颗粒进 入中心电极柱和外壳圆筒组成的环形区域,外壳圆筒 一般由 24 个电极环组成(前两个一般不进行数据处 理,所,以有效的电极环是 22 个),电极环与灵敏静电 计相连<sup>[70]</sup>。带电颗粒随着鞘气(sheath air, SA)进入环 形区域,由于电场的作用,带电颗粒向外筒偏移,具有 较高电迁移率的小颗粒偏转至外圆筒上部,具有较小 电迁移率的大颗粒偏移至外圆筒下部,然后静电计对 各个电流大小进行测量,进而得出颗粒的 PN 等信 息<sup>[70]</sup>。EEPS 有如下优点:1)高的尺寸分辨率,TSI 公 司的 3090 型 EEPS 尺寸分辨率为单级 16 个通道(共有 32 个通道)<sup>[10]</sup>;2)测量时间短,EEPS(3090,TSI)0.1 s 便可测出一个完整的颗粒物粒径分布。表 4 所示为使 用 EEPS 检测气溶胶样品的实验数据。从表 4 的数据 可以看出,柴油机尾气颗粒峰值数量密度对应的粒径 在 9.36~95.34 nm,而颗粒发生器生成的 NaCl 气溶胶 峰值浓度对应粒径在 36.22~50.71 nm。

EEPS 具有高响应速度的优点,发动机尾气颗粒的粒 径分布等信息随着工况迅速变化,因此 EEPS 适于发动 机尾气中的颗粒信息的测量。EEPS 和 FMPS 都是通过 静电计测得的电流大小反推得到颗粒的数量和粒径分布 等信息,但单极充电器对颗粒的充电量主要取决于颗粒 的形状结构,如分形维数小的颗粒携带的电荷可比分形 维数大的颗粒物携带的电荷多 20%~30% [71]。针对此问 题, EEPS 和 FMPS 的静电计中有一种数据反演矩阵, 针 对颗粒的形状特征选择合适的反演矩阵,从而获得颗粒 的粒径等信息。其中,针对柴油机尾气颗粒的典型特征 进行校正获得的碳烟矩阵适用于发动机尾气颗粒或交通 公路旁的大气颗粒物的检测<sup>[60]</sup>。Asbach 等<sup>[72]</sup>的研究表 明,与采用碳烟矩阵相比,使用原始矩阵的 EEPS 对粒 径>80 nm 的柴油机尾气颗粒数量浓度的测量值偏小。 另外,使用碳烟矩阵的 EEPS 对单分散发动机尾气颗粒 的测量值与 SMPS 的测量值之间的偏差在 20% 以内:针 对多分散颗粒的测量,与使用原始矩阵相比,同样条件下 EEPS 在使用碳烟矩阵时的粒径分布测量结果与 SMPS 的测量结果之间一致性更好。

### 1.5 电动低压撞击器

电动低压撞击器主要由气溶胶充电器(aerosol charger, AC),级联撞击器(cascade impactor, CI)和多通 道静电计(multichannel electrometer, ME)组成<sup>[66-68]</sup>,ELPI 基本结构如图 6 所示。





|        | 检测样品                                       | 测量参数数据(范围)   |               |  |                                  |  |
|--------|--|--|---------------|--|----------------------------------|--|
| 文献     |  |  |               | 粒径分布(PSD)  |                                  |  |
|        |  | -<br>总数量(浓度)范围   | 检测粒径<br>范围/nm | 峰值数量<br>浓度/(#/cm <sup>3</sup> )  | 峰值对应<br>粒径/nm                    |  |
| 文献[48] | 柴油机的尾气颗粒                                   | 4. $07 \times 10^5 \sim 3.5 \times 10^6$<br>#/cm <sup>3</sup>              | 5.6~560       | 1. $51 \times 10^{3} \sim 8.14 \times 10^{4}$<br>1. $83 \times 10^{3} \sim 5.46 \times 10^{3}$ | 9. 93 ~ 14. 23<br>51. 3 ~ 53. 66 |  |
| 文献[76] | 公路旁采集的气溶胶样品                                | $1.68 \times 10^4 \sim 1.51 \times 10^5 $ #/cm <sup>3</sup>                | 5.6~560       | 2. $88 \times 10^5 \sim 2.6 \times 10^6$   | 10.76~22.84                      |  |
| 文献[77] | 柴油机燃烧产生的颗粒                                 | 2. 25±0. 12×10 <sup>15</sup> ~<br>2. 73±0. 18×10 <sup>15</sup><br>#/bhp-hr | 5.6~560       | 7. $36 \times 10^4 \sim 1.32 \times 10^5$<br>2. $94 \times 10^5 \sim 3.45 \times 10^5$         | 10~11、<br>42.35~44               |  |
| 文献[78] | 一辆国五和两辆国六汽油<br>机的尾气颗粒                      | 3. $42 \times 10^{11} \sim 3. 11 \times 10^{12}$<br>#/km                   | 5.6~560       | 2. $06 \times 10^{10} \sim 4.05 \times 10^{11}$  | 9. 74~58. 41                     |  |
| 文献[33] | 两辆欧六-B的柴油机,两辆<br>欧六-B的汽油机和两辆<br>欧五汽油机的尾气颗粒 | 1. 2×10 <sup>10</sup> ~ 1. 4×10 <sup>12</sup><br>#/km                      | 5.6~560       | $1.4 \times 10^5 \sim 2.21 \times 10^8$  |                                  |  |
| 文献[65] | 两辆重型柴油卡车的尾气颗粒                              | 3. 5×10 <sup>16</sup> #  | 5.6~560       | 6. 57×10 <sup>10</sup> 3. 9×10 <sup>9</sup>  | 16. 13 69. 28                    |  |
| 文献[79] | 不同负荷转速下柴油机的尾气颗粒                            | $1.4 \times 10^7 \sim 1.3 \times 10^8 $ #/cm <sup>3</sup>                  | 5.6~560       | $3.7 \times 10^5 \sim 2.11 \times 10^7$  | 9.36~62.8                        |  |

表 4 发动机排气粒度仪检测颗粒物样品示例

Table 4 Examples of aerosol particle samples detected by engine exhaust particle sizer

首先,气溶胶充电器将待测颗粒样品充电,使颗粒样 品带电[73]。其后,带电颗粒样品进入的14级的级联撞 击器(市售的 ELPI 多为 14 级,前 13 级负责测量 17 nm~ 10 µm 颗粒,最后一级为过滤级,负责测量 6~17 nm 颗 粒)。带电颗粒样品随气流在级联撞击器中前进,但由于 颗粒尺寸和惯性的差异,较大的颗粒前进方向更难发生 偏转,可以被所在级别撞击器的收集板所捕获<sup>[11]</sup>。未被 捕获的颗粒将随着气流进入下一级别的撞击器,重复上 述的过程。每个撞击器上或是两个撞击器之间的触点上 都连接有多通道静电计,可以测量每级的电流信号的大 小<sup>[11]</sup>。电流信号的大小与颗粒的数量浓度和空气动力 学直径成正比,进而可以将电流信号转化为颗粒样品的 粒径分布和数量。ELPI 有如下优点:1) 粒径检测范围 广,市售的荷电低压颗粒物采样分析仪(ELPI+, Dekati) 的检测粒径范围为6nm~10μm;2)能够对颗粒物进行在 线或离线的检测;3)应用广泛,ELPI工作原理是根据颗 粒的空气动力学尺寸对颗粒样品进行按级分类,在大气 气溶胶和燃烧产生的气溶胶等检测上广泛应用<sup>[80]</sup>。 ELPI的缺点如下:1)需要较长的采样时间,对于传统的 称重法 ELPI 而言, 当测量大气气溶胶时, 每次运行往往 需要 90 min 的采样时间,以测量撞击器上收集基板的质 量差<sup>[73]</sup>:2)对于常规称重法而言,反复拆卸安装撞击器, 操作繁琐,同时,在拆除组装前后也有操作失误的可能, 导致无效测量<sup>[80]</sup>;3) ELPI 通过撞击器的收集对颗粒进

行测量,但是在这过程中有一些二次收集,如扩散、镜像 电荷(mirror charge, MC)和电荷排斥损失(charge repulsion losses, CRL)等,这会影响静电计测量的电流大 小,进而影响实际测量结果<sup>[74-75]</sup>。表5所示为使用 ELPI 检测气溶胶样品的实验数据。从表5的数据可以看出, ELPI 的粒径检测范围较广,6 nm~10 μm 不等。柴油机 尾气颗粒峰值数量密度对应的粒径在 21~76.3 nm 范围 内,而玉米秸秆和稻草等燃烧生成的颗粒物峰值浓度对 应粒径在 6~30 nm 范围。

ELPI 如今已广泛被应用在空气质量监测<sup>[81]</sup>,燃烧气 溶胶检测<sup>[82]</sup>,发动机尾气测量中<sup>[83]</sup>,但 ELPI 较低的尺 寸分辨率一直都是极为关键的问题,而且与此相关的研 究层出不穷。Dekati 公司在 2010 年推出的 ELPI+将级联 撞击器增加到了 15 级(14 个撞击级和 1 个过滤级),使 其可以实时测量从 6 nm~10 μm 粒径范围的颗粒,而且 重新设计了静电计,可实现 10 Hz 的采样频率,ELPI+的 最小尺寸分辨率由 0.025 2 μm 提升至 0.014 7 μm<sup>[84]</sup>。

## 2 常用检测技术优缺点对比

在 1990 年 Wang 等<sup>[59]</sup>在美国 TSI 公司的 3071 型微分迁移率分析仪的基础上,通过连续改变分析仪电压和连续监测留在样品流中的颗粒浓度来测量粒径分布,研制出了扫描电子迁移率光谱仪(scanning electrical

#### 表 5 电动低压撞击器检测颗粒物样品示例

Table 5 Examples of aerosol particle samples detected by electrical low-pressure impactor

|                            | 检测样品 总数量         | 测量参数数据(范围)  |                   |   |                |  |
|----------------------------|------------------|---|-------------------|---|----------------|--|
| 小計                         |                  |   | 粒径分布(PSD)         |   |                |  |
| 入山                         |                  | 总数量浓度范围   | 检测粒径<br>范围        | 峰值数量<br>浓度  | 峰值对应<br>粒径     |  |
| Yang 等 <sup>[85]</sup>     | 柴油机的尾气颗粒         | 4. 63×10 <sup>5</sup> ~2. 15×10 <sup>6</sup><br>#/cm <sup>3</sup> | 7 nm~10 μm        | $1.89 \times 10^{5} \sim$<br>9.23×10 <sup>5</sup> #/cm <sup>3</sup>   | 70. 9~76. 3 nm |  |
| Chien 等 <sup>[86]</sup>    | 摩托车的尾气颗粒         | 2. $07 \times 10^4 \sim 2.60 \times 10^4$<br>#/cm <sup>3</sup>    | 0.03~9.97 μm      | 4. 94×10 <sup>3</sup> ~<br>5. 44×10 <sup>3</sup><br>#/cm <sup>3</sup> | 0. 11~0. 67 μm |  |
| Cornette 等 <sup>[87]</sup> | 小型锅炉产生的颗粒物       | 3. $4 \sim 8. 1 \times 10^{13}$<br>#/m <sup>3</sup>               | 10 nm~8.3 μm      | 8. 8 ~ 8. 9 × 10 <sup>13</sup><br>#/m <sup>3</sup>                    | 68 nm          |  |
| Li 等 <sup>[88]</sup>       | 玉米秸秆和稻草等燃烧产生的颗粒物 | -   | 6 nm~<br>9.890 μm | $1.9 \times 10^5 \sim 5.3 \times 10^6$<br>#/cm <sup>3</sup>           | 6~30 nm        |  |
| Liang 等 <sup>[89]</sup>    | 满足欧四排放法规乘用车的尾气颗粒 | 8. 02×10 <sup>11</sup> ~<br>4. 67×10 <sup>12</sup><br>#/km        | 8 nm~10 μm        | 5. 14×10 <sup>11</sup> ~<br>1. 84×10 <sup>12</sup><br>#/km            | 21 nm 左右       |  |
| Maricq 等 <sup>[90]</sup>   | 轻型柴油车的的尾气颗粒      | -   | 10 nm~10 μm       | 1. 86×10 <sup>15</sup><br>#/km  | 29. 60 nm      |  |

mobility spectrometer, SEMS)。Wang 等<sup>[59]</sup>使用 SEMS 检测了颗粒发生器产生的硫酸铵气溶胶。结果显示,SEMS的步进操作模式可以在 7 min 内给出 100 个颗粒的粒径分布,而仪器的连续扫描模式可以在 30~60 s 内给出完整的粒径分布。这种方法被考虑为 DMA 的替代操作模式。由于 SEMS 可以对所有样品颗粒的迁移率都能测量到,所以即使是高度单分散的气溶胶也可以在快速扫描中检测到。随着时间分辨率的显著提高,小尺寸气溶胶颗粒的动力学信息可以被较准确的捕捉到。而在此之前,小气溶胶颗粒的动力学经常被归结为仪器的噪声<sup>[59]</sup>。鉴于当时国内外对粒径<23 nm 的超细颗粒检测并没有足够的重视,所以 SEMS 只能对粒径>23 nm 的颗粒进行分析。

Chang 等<sup>[58]</sup>研究的 FDMA 进一步提高了气溶胶的数 量浓度测量范围,同时其分辨率和测量时间相对于 DMA 也得到了优化。Chang 等采用 FDMA 对如下两种气溶胶 进行了数量浓度测量:1)静电分类器(electrostatic classfier, EC)产生的单分散型无机气溶胶(inorganic aerosol, IOA);2) 熏香燃烧产生的碳烟颗粒(organic aerosol, IOA);2) 熏香燃烧产生的碳烟颗粒(organic aerosol, OA)。实验结果表明,当 OA 浓度达到 10<sup>11</sup> g/cm<sup>3</sup>时,FDMA 仍然可以直接进行 PN 的测量。测 量结果显示,与 SMPS 相比,FDMA 对 OA 的总颗粒数量 浓度测量结果基本相同。同时,在对气溶胶的数量中值 直径(number median diameters, NMD)的测量中,FDMA 对 NMD 的测量值要小于 SMPS。这是由 FDMA 的高分 辨率造成的。FDMA 分辨率可达到 3 nm,而 SMPS 只有 10 nm<sup>[58]</sup>。所以 FDMA 对 NMD 的测量结果更接近于气 溶胶 NMD 的实际数值。此外,与 SMPS 相比 FDMA 具有 响应时间短的优点。FDMA 的响应时间只有 5 s,比 SMPS 的响应时间(30 s)要短得多<sup>[58]</sup>。

Saari 等<sup>[75]</sup>在实验和道路运行条件下对高分辨率的 电子低压撞击器(HR-ELPI+, Dekati)的粒度分辨率,数 据分析质量等性能进行了分析研究,并将结果与 SMPS 和 EEPS 进行了对比。分别利用 HR-ELPI+对三类气溶 胶进行了评估:1) 粒子发生器产生的癸二酸二辛酯 (DEHS)气溶胶;2)管式炉蒸发产生的氯化钠气溶胶;3) 乘用柴油车运行美国 US-06 标准驾驶循环产生的颗粒物 排放。以上测量结果分别与 SMPS 和 EEPS 进行了对比。 在实验中,Saari 等绘制了 DEHS(GMD=12 nm) 和氯化钠 (GMD=28 nm)组合而成的双模态气溶胶的粒径分布。 与 SMPS 和 EEPS 相比, HR-ELPI+对氯化钠气溶胶的 GMD(39 nm)测量结果偏大。这是因为 SMPS 和 EEPS 测量的是颗粒物的迁移率直径,而HR-ELPI+测量的为颗 粒物的气溶胶动力学直径。氯化钠颗粒的有效密度较 高,其气溶胶动力学直径大于迁移率直径,从而导致 ELPI的 GMD 测量结果大于 SMPS 和 EEPS;同时,将 HR-

9

ELPI+分别与 SMPS 和 EEPS 对 DEHS 和氯化钠气溶胶 总数量浓度的测量结果进行线性回归发现,两者的相关 性决定系数(coefficient of determination, R<sup>2</sup>)均高达 0.99。在气溶胶总数量浓度的测量上,HR-ELPI+具有较高的可靠性<sup>[75]</sup>。针对柴油车 US-06 标准驾驶循环产生的碳烟颗粒,与 EEPS 相比,HR-ELPI+测量的 GMD 较大,而粒径分布更窄,这原因可能是大部分的碳烟颗粒 (分形维数<3)在凝聚阶段形成了较大尺寸的颗粒,被测碳烟颗粒样品的有效密度降低<sup>[91]</sup>。其气溶胶动力学直径小于迁移率直径,最终导致 HR-ELPI+的 GMD 测量结果比 EEPS 更小。HR-ELPI+粒径测量下限为 16 nm,相 对于 23 nm 粒径有了较大的突破,但是距离 10 nm 粒径 测量目标仍有一定距离。

2021 年 Lin 等<sup>[60]</sup>使用 FMPS 和 SMPS 对粒径在 5.6~560 nm 的环境气溶胶进行测量,并分别对 FMPS 的 紧凑矩阵和碳烟矩阵<sup>[70,92]</sup>进行了性能评估。研究结果表 明,FMPS 的紧凑矩阵和 SMPS 在 9~359 nm 尺寸范围内 的总颗粒数量浓度最为一致,测定系数 *R*<sup>2</sup>=0.97,而碳烟 矩阵最低,*R*<sup>2</sup>=0.79。这是因为处于核态模式下的近球 形颗粒在环境气溶胶中浓度较高。而紧凑矩阵是使用实 验室生成的蔗糖、聚 α-烯烃油(PAO)和氯化钠的近球形 颗粒研发的,在对近球形颗粒的测量上相对于碳黑矩阵 会更有优势,所以紧凑矩阵与 SMPS 在总颗粒数量浓度 上会显得更加一致<sup>[60]</sup>。然而,由于以上检测方法均未考 虑废气颗粒的化学成分以及分形维数对测量结果的影 响,且测量样品相对单一,测量地点及时间固定;同时,作 为参考仪器的 SMPS 对于粒径<15 nm 的颗粒测量有较大 的不确定度<sup>[60]</sup>。

2020 年 Bainschab 等<sup>[93]</sup> 使用 CPC 对实际道路的颗 粒物排放进行了测量,并将采用 CPC 检测方法的 DownToTen PEMS ( portable emissions measurement systems)和 PN-PEMS (AVL MOVE)的总颗粒数量浓度 的检测数据进行了对比。在 DownToTen PEMS 中,为了 将颗粒数量降低至 CPC 可测量的范围内,待测颗粒样品 经过了两个稀释级进行稀释。稀释后的颗粒样品通入催 化汽提塔(catalytic stripper, CS)进行挥发性和半挥发性 颗粒的脱除<sup>[93]</sup>。然后颗粒进入 CPC 中进行计数,为对比 <23 nm 颗粒的测量状况, DownToTen PEMS 使用 TSI 公 司的 3790A CPC 和 AVL 公司的一种商用 CPC, 分别能够 测量粒径>10 nm 和>23 nm 的颗粒, 而 PN-PEMS(AVL MOVE)的 CPC 能测量>23 nm 的颗粒。在验证实验中, Bainschab 等对实际道路排放测试中产生的颗粒进行了 测量,并使用 DownToTen PEMS 和 PN-PEMS (AVL MOVE)测量了车辆行驶时间段内的 PN 排放。测量结果 表明,在车辆行驶的大多数时间段内,总颗粒数量浓度测 量值基本完全一致:然而车辆在冷启动时,出现了显著的

粒径<23 nm 的颗粒排放<sup>[93]</sup>。在这期间,AVL 公司的商用 CPC 测量结果明显高于另外二者,所以使用 10 nm CPC 的 DownToTen PEMS 保障了总颗粒数量浓度的测量 准确性,同时可以对小粒径颗粒进行测量。

2020 年 Wang 等<sup>[42]</sup> 对冷凝颗粒计数器的光学粒子 检测模块等方面进行了如下优化:1)开发了高速光学粒 子检测模块,有更高的检测粒子性能;2)饱和器入口安装 有液体传感器,可保证饱和器内部正丁醇的量,设计了一 种全流式丁醇冷凝颗粒计数器<sup>[42]</sup>。该装置能够对粒径 低至 4.5 nm 的颗粒进行测量,并且具有良好的检测效率 和单颗粒计数能力。在单一计数模式下, Wang 等的全流 式丁醇冷凝颗粒计数器在单一计数模式下可以对浓度高 达 2×10<sup>5</sup> particles/cm<sup>3</sup> 的颗粒物进行测量,而 TSI 公司的 3775 型冷凝颗粒计数器在该测量模式下的最大测量浓 度仅为 5×10<sup>4</sup> particles/cm<sup>3</sup>。因此,全流式丁醇冷凝颗粒 计数器在单颗粒计数方面更有竞争力。该研究对设备的 检测效率和测量粒径范围评价如下.1)对于检测效率:对 电喷雾气溶胶发生器(3482, TSI)产生的蔗糖气溶胶进 行了表征,结果显示,<2.7 nm 的颗粒,检测效率<10%, 而对于>8 nm 的颗粒, 检测效率迅速提高到 90% 以上:2) 对于测量粒径范围:设备对雾化器(MetOne-255)产生的 标准聚苯乙烯颗粒的数量浓度进行了测量,并使用商业 冷凝颗粒计数器(3775, TSI)和气溶胶静电计(3068B, TSI)作为参考仪器。结果表明,全流式丁醇冷凝颗粒计 数器与参考仪器测得的颗粒数量浓度的偏差随着待测样 本的浓度增加而变大:在70~2.6×10<sup>5</sup> particles/cm<sup>3</sup> 的数 量浓度范围, Wang 等<sup>[42]</sup>将全流式丁醇冷凝颗粒计数器 的测量结果与参考仪器测得的颗粒数量浓度进行了线性 回归,结果显示二者的线性相关决定系数  $R^2 = 0.99$ .一致 性良好。

# 3 常用检测技术在未来机动车排放法规检 测中的适用性

目前,重型车辆的欧 6-E 排放法规已在新车型上 使用,并在 2022 年 1 月对所有车辆生效,这项法规将 进一步约束车辆的冷启动排放和 PN 排放<sup>[94]</sup>。同时, 轻型车辆的国六-A 排放法规已在全国范围内逐步实施, 轻型车辆的国六-B 排放法规已经在北京等重要地区实 施<sup>[95]</sup>。轻型车辆从国六-A 到国六-B,细颗粒物(PM2.5) 质量的排放限值从 4.5 mg/km 降低到了 3.0 mg/km,在 世界统一稳态测试循环(world harmonized steady-state cycle, WHSC)下, PN 的 排 放 限 值 仍 保 持 为 8.0×10<sup>11</sup> particles/kW·h。

轻型车辆的国七与欧六之后的排放法规对排放的要求基本相似,主要体现在如下两点:1)严格控制粒

径<23 nm 的颗粒物,将颗粒物的粒径下限降低至 10 nm; 2)增加 Urban RDE 测试循环,引入一系列新的短距离循 环,并强调减少城市空气中的颗粒物<sup>[95-96]</sup>。

根据以上两点法规要求,颗粒物排放检测设备应满 足如下两点检测要求。

1) 粒径<23 nm 颗粒物数量浓度排放检测要求: 自从 颗粒捕集器(diesel particulate filter, DPF)引入轻型车辆 上,柴油机的颗粒物质量得到了良好的控制<sup>[97]</sup>。然而, 仍有一部分颗粒无法被 DPF 捕捉到,这部分颗粒基本是 核态模式下的颗粒,峰值浓度在 10~20 nm 范围内<sup>[95]</sup>。 根据最近的报道,50%的颗粒粒径低于如今法规要求的 最低尺寸(23 nm)<sup>[98]</sup>。2019年 Giechaskiel 等<sup>[99]</sup>,使用满 足欧6排放法规的柴油车和燃用压缩天然气(compressed natural gas, CNG)的车辆在世界统一轻型车辆测试循环 (world harmonised light-duty vehicles test cycle, WLTC)进 行试验,发现柴油车的颗粒物粒径在 10~23 nm 的百分 比(相对于粒径>23 nm 的颗粒而言)为 26%~31%, CNG 车辆高达 127%~152%。Lähde 等<sup>[100]</sup>使用满足欧四排放 法规的直列六缸重型柴油机在欧洲稳态循环(european steady cycle, ESC)下进行实验,并测量颗粒物的数量浓 度,结果显示,在50%的发动机最大负荷下,发动机尾气 中的核态颗粒(3~33.19 nm)的数量浓度是其他粒径范 围内颗粒的数量浓度的 3.95 倍。Giechaskiel 等<sup>[5]</sup>使用 配备了 DPF 和柴油机氧化催化转换器 (diesel oxidation catalysts, DOC)的柴油机进行试验,发现柴油机排放的粒 径 < 23 nm 的颗粒约为粒径 > 23 nm 颗粒的 20%。 Giechaskiel 等<sup>[101-102]</sup> 发现缸内直喷式 (gasoline direct injection, GDI) 汽油机尾气粒径<23 nm 的颗粒也可以占 到 30%~40%。同时, Giechaskiel 等<sup>[103]</sup>发现摩托车和进 气道燃油喷射(port fuel injection, PFI)汽油车在典型测 试循环下尾气中的粒径<23 nm 的颗粒的百分比甚至达 到 60%。所以,对于下一阶段的颗粒检测,要求测量仪器 要测量范围广,能测量粒径>10 nm 的颗粒,且测量结果 准确,能够稳定测量。

2) Urban RDE 工况下的颗粒物检测要求:轻型车辆 的国七法规强调减少城市空气中的颗粒物。对于城市空 气而言,大部分颗粒物来自于机动车的尾气排放,尤其是 超细颗粒物(粒径<100 nm 的颗粒物)。车辆在实际道路 中的尾气排放量和燃油消耗量可能会远高于车辆认证试 验中实验室底盘测功机的测量值<sup>[104-105]</sup>。在轻型车辆上, RDE 驾驶循环可以缩小实际道路排放数据和实验室测 量数据之间的差异<sup>[95]</sup>。RDE 驾驶循环综合考虑了驾驶 工况、驾驶习惯、交通状况以及温度海拔等因素,可以更 真实地反映发动机在实际运行过程中的状况,具有高瞬 变,高随机性等特点。因此,为了满足 RDE 测试工况下 的车辆颗粒物排放测试需求,测量仪器应具有响应速度 快,性能稳定,可操作性强,可以在整车上进行在线测量 等特点。

本文讨论的几类主要测量仪器中,ELPI 具有较广的 粒径检测范围,但传统的称重法 ELPI 采样时间长 达90 min,操作繁琐,而且 ELPI 分辨率相对于其他 PN 测量仪器而言较低(一般为14级左右),所以并不能满足 RDE 工况下的颗粒物测量要求。DMA 具有较好的兼容 性,可以连接其他检测仪器,但是测量时间较长(30 s), 因此并不适合下一阶段的排放法规。SMPS 测量粒径范 围广,有较高的分辨率,但是与 DMA 一样,目前传统 SMPS 响应时间至少为 30 s,无法为研究人员提供实时的 检测信息,而且 SMPS 体积庞大,并不适合 RDE 测试工 况下的颗粒物测量。CPC 具有较短的响应时间(可达 到2s),可以测量10~23 nm 粒径范围内的非挥发性颗 粒,如 CPC(3785, TSI) 最快响应时间可以达到 2 s, 而 2020年 Wang 等<sup>[42]</sup>设计的全流式丁醇冷凝颗粒计数器 粒径最低可检测值为 4.5 nm,测量粒径>8 nm 的颗粒检 测效率可达90%以上,能够满足下一阶段排放法规的要 求。同时,采用 CPC 方法检测的 PEMS 可直接安装在车 辆上,测量车辆的 PN 及颗粒物质量,降低了拆卸发动机 并在实验室测功机上进行测试的成本[97],适合在整车上 进行在线测量,基本满足下一阶段排放法规的要求。 Bainschab 等<sup>[93]</sup>的使用 CPC 的 DownToTen PEMS 已经在 道路上进行 RDE 测量验证,测量结果和 PN-PEMS 基本 相同,能稳定测量粒径>10 nm 的非挥发性颗粒,具有低 损耗,高效率等优点,基本满足国内新阶段法规要求。但 CPC 不能给出颗粒物的粒径分布,且测量时必须保持水 平,极大约束了 CPC 的应用范围。EEPS 测量时间短,例 如 EEPS(3090, TSI)可以每 0.1 s 给出一个完整的粒径 分布,粒径检测范围是 5.6~560 nm,能够检测粒径> 10 nm 的颗粒物,且具有较高的尺寸分辨率,例如 TSI 公 司的 3090 型 EEPS 尺寸分辨率为单级 16 个通道(共有 32个通道)。综上所述,对于车辆尾气颗粒的 PN 测量, CPC 可实现高效率检测粒径>10 nm 颗粒和满足 RDE 驾 驶循环下的车辆尾气排放测试需求,但无法给出待测颗 粒的粒径分布,因此 CPC 适合测量颗粒物的总颗粒数量 浓度。但对于具体粒径范围内的粒径分布,推荐使用 EEPS.EEPS 的测量时间短,可实时给出车辆的粒径 分布。

#### 4 结 论

颗粒物是柴油机的重要污染物之一,颗粒物的产生 严重威胁着人类的身体健康和生态环境的稳定。近年 来,排放法规对颗粒物的要求也越来越严格。机动车下 一阶段排放法规针对颗粒物排放控制和测试的需求为将 颗粒物的粒径下限降低至10nm;增加城市真实驾驶排放 的驾驶循环,强调减少城市空气中的颗粒。根据这两点 要求,要求测量仪器要能够稳定测量粒径>10nm的颗 粒,响应速度快,可操作性强,可以在整车上进行在线测 量。针对此需求,本文对现有常用颗粒物数量浓度检测 设备的测量原理和适用场合进行了分析,得出以下结论。

1)冷凝颗粒计数器可作为测量颗粒物的总颗粒数量 浓度的测量仪器。冷凝颗粒计数器不仅能够测量粒径低 至10 nm 颗粒,响应时间低至2s,并且采用冷凝颗粒计数 器方法的 PEMS 可在整车上进行在线测量,大大降低了 拆卸发动机并在实验室测功机上进行测试的成本,可满 足真实驾驶排放的驾驶循环的要求。然而,冷凝颗粒计 数器可以测量颗粒物的数量浓度,但是无法给出对应的 粒径分布,不适用于针对<23 nm 的颗粒物数量浓度控制 技术的研发场合。

2)发动机排气粒度仪可作为测量特定粒径范围内的 颗粒物粒径分布测量仪器。发动机排气粒度仪可测量粒 径>5.6 nm 的颗粒,每0.1 s 便可以给出一个完整的粒径 分布,且具有高的尺寸分辨率,可满足最新排放法规的 要求。

#### 参考文献

[1] 张翠平, 王铁. 内燃机排放与控制[M]. 北京: 机械 工业出版社, 2013: 8-9.

> ZHANG C P, WANG T. Internal combustion engine emissions and control[M]. Beijing: Mechanical Industry Press, 2013: 8-9.

- [2] CASATI R, SCHEER V, VOGT R, et al. Measurement of nucleation and soot mode particle emission from a diesel passenger car in real world and laboratory in situ dilution[J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(10): 2125-2135.
- [3] LELIEVELD J, EVANS J S, FNAIS M, et al. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale [J]. Nature, 2015, 525: 367-371.
- [4] RAMANATHAN V, CARMICHAEL G. Global and regional climate changes due to black carbon[J]. Nature Geoscience, 2008, 36(4): 335-358.
- [5] SAMOLI E, ATKINSON R W, ANALITIS A, et al. Associations of short-term exposure to traffic-related air pollution with cardiovascular and respiratory hospital admissions in London, UK [J]. Occupational & Environmental Medicine, 2016, 73(5): 300-307.
- [6] NOVAKOV T, RAMANATHAN V, HANSEN J E, et al. Large historical changes of fossil-fuel black carbon

aerosols [ J ]. Geophysical Research Letters, 2003, 30(6): 57.

- YING Q, MYSLIWIEC M, KLEEMAN M J. Source apportionment of visibility impairment using a three-dimensional source-oriented air quality model [J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38 (4): 1089-1101.
- [8] BURNETT R T, POPE C A, EZZATI M, et al. An integrated risk function for estimating the global burden of disease attributable to ambient fine particulate matter exposure [J]. Environmental Health Perspect, 2014, 122(4): 397-403.
- [9] HEAL M R, KUMAR P, HARRISON R M. Particles, air quality, policy and health [J]. Chemical Society Reviews, 2012, 41(19): 6606-6630.
- [10] SHUKLA P C, GUPTA T, GUPTA N, et al. A qualitative correlation between engine exhaust particulate number and mass emissions[J]. Fuel, 2017, 202: 241-245.
- [11] 张远军.机动车颗粒物排放测试与研究[D].武汉: 武汉理工大学,2006.
  ZHANG Y J. Testing and research on particulate matter emission from motor vehicles [D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2006.
- [12] 杜家坤,孙万臣,王晓丹,等.GTL 添加比例对高压 共轨柴油机微粒排放粒度分布的影响[J].内燃机学 报,2013,31(3):241-247.
  DU J K, SUN W CH, WANG X D, et al. Effect of GTL ratio on particle size distribution in common-rail diesel engine [J]. Transactions of Csice, 2013, 31 (3): 241-247.
- [13] KITTELSON D, JOHNSON J, WATTS W, et al. Diesel aerosol sampling in the atmosphere [J]. SAE Technical Papers, 2000, 2000-01-2212.
- [14] KITTELSON D B. Engines and nanoparticles: A review[J]. Journal of Aerosol Science, 1998, 29(5): 575-588.
- [15] DHAR A, AGARWAL A K. Effect of Karanja biodiesel blends on particulate emissions from a transportation engine[J]. Fuel, 2015, 141: 154-163.
- [16] LAPUERTA M, RODRIGUEZ-FERNANDEZ J, AG-UDELO J R. Diesel particulate emissions from used cooking oil biodiesel [J]. Bioresour Technol, 2008, 99(4): 731-740.
- [17] AGARWAL A K, GUPTA T, KOTHARI A. Particulate emissions from biodiesel vs diesel fuelled compression

ignition engine [J]. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2011, 15(6): 3278-3300.

- [18] KAGAWA J. Health effects of diesel exhaust emissions— A mixture of air pollutants of worldwide concern [J]. Toxicology, 2002, 181-182: 349-353.
- [19] 杨礼河, 解世文, 孙玉德. 发动机烟度测量装置的设计与实现[J]. 电子测量与仪器学报, 2004, 18(2): 25-29.

YANG L H, XIE SH W, SUN Y D. Design and realization of smoke intensity measuring device for engine[J]. Journal of Electronic Measurement and Instrumentation, 2004, 18(2): 25-29.

 [20] 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.

[21] 张敏,周鑫玲,王向军,等.基于光散射原理的尘埃 粒子检测仪[J]. 仪器仪表学报,2005,26(12): 1298-1301.

ZHANG M, ZHOU X L, WANG X J, et al. The particle detector based on principle of light scattering[J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2005, 26 (12): 1298-1301.

- [22] VU T V, DELGADO-SABORIT J M, HARRISON R M. Review: Particle number size distributions from seven major sources and implications for source apportionment studies [J]. Atmospheric Environment, 2015, 122: 114-132.
- [23] MORAWSKA L, THOMAS S, JAMRISKA M, et al. The modality of particle size distributions of environmental aerosols[J]. Atmospheric Environment, 1999, 33(27): 4401-4411.
- [24] GU X L, HUANG Z H, CAI J, et al. Emission characteristics of a spark-ignition engine fuelled with gasoline-n-butanol blends in combination with EGR[J]. Fuel, 2012, 93: 611-617.
- [25] GENG L M, XIAO Y G, LI S J, et al. Effects of injection timing and rail pressure on particulate sizenumber distribution of a common rail DI engine fueled with fischer-tropsch diesel synthesized from coal [J]. Journal of the Energy Institute, 2021, 95: 219-230.
- [26] AFSHARI A, MATSON U, EKBERG L E. Characterization of indoor sources of fine and ultrafine

particles: A study conducted in a full-scale chamber[J]. Indoor Air, 2010, 15(2): 141-150.

- [27] ZHANG T H, ZHU Z M, GONG W, et al. Characteristics of ultrafine particles and their relationships with meteorological factors and trace gases in Wuhan, Central China [J]. Atmosphere, 2016, 7(8): 96.
- [28] AGARWAL J K, SEM G J. Continuous flow, singleparticle-counting condensation nucleus counter [J]. Journal of Aerosol Science, 1980, 11(4): 343-357.
- [29] 郭皓天,韩晓霞,刘俊杰,等.凝结核粒子计数器的研究及校准技术现状[J].仪器仪表学报,2021,42(7):1-13.

GUO H T, HAN X X, LIU J J, et al. Research and calibration technology of condensation particle counter[J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2021, 42(7): 1-13.

- [30] CHIU Y J, LEONG K S, CHANG L M. CPC and SMPS systems of monitoring airborne nanoparticles-theory and experiment [ J ]. Applied Mechanics and Materials, 2011, 101-102: 60-66.
- [31] HANDY R G, JACKSON M J, ROBINSON G M, et al. The measurement of ultrafine particles: A pilot study using a portable particle counting technique to measure generated particles during a micromachining process[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2006, 15(2): 172-177.
- [32] ZHENG Z Q, DURBIN T D, KARAVALAKIS G, et al. Nature of sub-23-nm particles downstream of the european particle measurement programme (PMP)-compliant system: A real-time data perspective [J]. Aerosol Science and Technology, 2012, 46(8): 886-896.
- [33] GIECHASKIEL B, VANHANEN J, VÄKEVÄ M, et al. Investigation of vehicle exhaust sub-23 nm particle emissions[J]. Aerosol Science and Technology, 2017, 51(5): 626-641.
- [34] SAGHAFIFAR H, KüRTEN A, CURTIUS J, et al. Characterization of a modified expansion conden-sation particle counter for detection of nanometer-sized particles[J]. Aerosol Science and Technology, 2009, 43 (8): 767-780.
- [35] TAKEGAWA N, IIDA K, SAKURAI H. Modification and laboratory evaluation of a TSI ultrafine condensation particle counter (Model 3776) for airborne measurements[J]. Aerosol Science and Technology, 2016, 51 (2): 235-245.

- [36] TAUBER C, BRILKE S, WLASITS P J, et al. Humidity effects on the detection of soluble and insoluble nanoparticles in butanol operated condensation particle counters [ J ]. Atmospheric Measurement Techniques, 2019, 12 (7): 3659-3671.
- [37] 张鑫,陈龙飞,梁志荣,等.凝聚核粒子计数器的理论研究及数值模拟[J].科技导报,2015,33(6):73-78.
  ZHANG X, CHEN L F, LIANG ZH R, et al.

Theoretical investigation on condensation particle counter and its numerical simulation [J]. Science & Technology Review, 2015, 33(6): 73-78.

- [38] CADLE R D, LANGER G. Stratospheric Aitken particles near the tropopause [J]. Geophysical Research Letters, 2013, 2(8): 329-332.
- [39] WANG W Y, ZHAO X, ZHANG J S, et al. Design and evaluation of a condensation particle counter with high performance for single-particle counting [ J ]. Instrumentation Science & Technology, 2019, 48 ( 2 ): 212-229.
- [40] SETO T, NAKAMOTO T, OKUYAMA K, et al. Size distribution measurement of nanometer-sized aerosol particles using DMA under low-pressure conditions [J]. Journal of Aerosol Science, 1997, 28(2): 193-206.
- [41] WIEDENSOHLER A. An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range[J]. Journal of Aerosol Science, 1988, 19(3): 387-389.
- [42] JOHNSON T, CALDOW R, PÖCHER A, et al. A new electrical mobility particle sizer spectrometer for engine exhaust particle measurements [J]. SAE Technical Papers, 2004, 2004-01-1341.
- [43] SHI J P, HARRISON R M, EVANS D. Comparison of ambient particle surface area measurement by epiphaniometer and SMPS/APS [J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(35): 6193-6200.
- [44] KOUSAKA Y, OKUYAMA K, ADACHI M, et al. Effect of Brownian diffusion on electrical classification of ultrafine aerosol particles in differential mobility analyzer[J]. Journal of Chemical Engineering of Japan, 1986, 19(5): 401-407.
- [45] AMANATIDIS S, HUANG Y L, PUSHPAWELA B, et al. Efficacy of a portable, moderate-resolution, fastscanning differential mobility analyzer for ambient aerosol size distribution measurements [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2021, 14(6): 4507-4516.

- [46] GILLIG K J, CHEN C H. Increasing the performance of portable ion mobility analyzers: Development of the periodic focusing differential mobility analyzer (PFDMA)[J]. Mass Spectrometry, 2014, 3 (Spec Issue); S0032.
- [47] BISKOS G, REAVELL K, COLLINGS N. Description and theoretical analysis of a differential mobility spectrometer [J]. Aerosol Science and Technology, 2005, 39 (6): 527-541.
- [48] INTRA P, TIPPAYAWONG N. Brownian diffusion effect on nanometer aerosol classification in electrical mobility spectrometer [J]. Korean Journal of Chemical Engineering, 2009, 26 (1): 269-276.
- [49] FIERZ M, SCHERRER L, BURTSCHER H. Real-time measurement of aerosol size distributions with an electrical diffusion battery [J]. Journal of Aerosol Science, 2002, 33(7): 1049-1060.
- [50] CHANG C T, MA C M, HONG G B, et al. Performance study of SMPS and FDMA for nanometer aerosol particle measurements[J]. Advanced Materials Research, 2011, 213: 39-42.
- [51] WANG S C, FLAGAN R C. Scanning electrical mobility spectrometer [ J ]. Aerosol Science and Technology, 1990, 13(2): 230-240.
- [52] LIN Y, PHAM L, WANG X L, et al. Evaluation of fast mobility particle sizer (FMPS) for ambient aerosol measurement [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2021, 21(4): 1-12.
- [53] CHEN L F, ZHANG X, ZHANG C Q, et al. Experimental investigation of a condensation particle counter challenged by particles with varying wettability to working liquid [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2017, 17(11): 2743-2750.
- [54] MAGNUSSON L E, ANISIMOV M P, KOROPCHAK J A. Evidence for sub-3 nanometer neutralized particle detection using glycerol as a condensing fluid [J]. Journal of Aerosol Science, 2010, 41(7): 637-654.
- [55] MULLEN N A, BHANGAR S, HERING S V, et al. Ultrafine particle concentrations and exposures in six elementary school classrooms in northern California [J]. Indoor Air, 2011, 21(1): 77-87.
- [56] MULHOLLAND G W, DONNELLY M K, HAGWOOD C R, et al. Measurement of 100 nm and 60 nm particle standards by differential mobility analysis [J]. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 2006, 111(4): 257-312.

- [57] BARMPOUNIS K, MAISSER A, SCHMIDT-OTT A, et al. Lightweight differential mobility analyzers: Toward new and inexpensive manufacturing methods[J]. Aerosol Science and Technology, 2016, 50(1): 2-5.
- [58] ONEL S, MUNTEAN A, CHIANG C-T, et al. Assessing the uptake of 1-hexene on gasborne silver and gold nanoparticles [J]. Journal of Aerosol Science, 2019, 134: 56-64.
- [59] MUN J H, CHO D G, KIM Y J, et al. Development and calibration of differential mobility analyzer for 20 to 80 nm particles under low pressure conditions [J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2011, 11(7): 6275-6282.
- [60] YANG S M, KIM S R, YOUN W K, et al. Generation of charged nanoparticles during thermal evaporation of silver at atmospheric pressure[J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2015, 15(11): 8418-8423.
- [61] SHAH S D, COCKER D R. A fast scanning mobility particle spectrometer for monitoring transient particle size distributions[J]. Aerosol Science and Technology, 2005, 39 (6): 519-526.
- [62] WANG J, MCNEILL V F, COLLINS D R, et al. Fast mixing condensation nucleus counter: Application to rapid scanning differential mobility analyzer measurements [J]. Aerosol Science and Technology, 2010, 36 (6): 678-689.
- [63] WANG X L, GROSE M A, AVENIDO A, et al. Improvement of engine exhaust particle sizer (EEPS) size distribution measurement - I. Algorithm and applications to compact-shape particles [J]. Journal of Aerosol Science, 2016, 92: 95-108.
- [64] SHIN W G, WANG J, MERTLER M, et al. The effect of particle morphology on unipolar diffusion charging of nanoparticle agglomerates in the transition regime [J]. Journal of Aerosol Science, 2010, 41 (11): 975-986.
- [65] ASBACH C, KAMINSKI H, FISSAN H, et al. Comparison of four mobility particle sizers with different ti-me resolution for stationary exposure measurements[J]. Journal of Nanoparticle Research, 2009, 11 (7): 1593-1609.
- [66] MARJAMKI M, KESKINEN J, CHEN D R, et al. Performance evaluation of the electrical low-pressure imapactor (ELPI) [J]. Journal of Aerosol Science, 2000, 31(2): 249-261.
- [67] VIRTANEN A, MARJAMÄKI M, RISTIMÄKI J, et al. Fine particle losses in electrical low-pressure

impactor[J]. Journal of Aerosol Science, 2001, 32(3): 389-401.

- [68] SAARI S, ARFFMAN A, HARRA J, et al. Performance evaluation of the HR-ELPI + inversion [J]. Aerosol Science and Technology, 2018, 52(9): 1037-1047.
- [69] KESKINEN J, PIETARINEN K, LEHTIMKI M. Electrical low pressure impactor [J]. Journal of Aerosol Science, 1992, 23(4): 353-360.
- [70] GOURIOU F, MORIN J P, WEILL M E. On-road measurements of particle number concentrations and size distributions in urban and tunnel environments [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38(18): 2831-2840.
- [71] COUDRAY N, DIETERLEN A, ROTH E, et al. Density measurement of fine aerosol fractions from wood combustion sources using ELPI distributions and image processing techniques [ J ]. Fuel, 2009, 88 ( 5 ): 947-954.
- [72] MARICQ M M, PODSIADLIK D H, CHASE R E. Size distributions of motor vehicle exhaust PM: A Comparison Between ELPI and SMPS Measurements [J]. Aerosol Science & Technology, 2000, 33(3): 239-260.
- [73] JÄRVINEN A, AITOMAA M, ROSTEDT A, et al. Calibration of the new electrical low pressure impactor (ELPI+)[J]. Journal of Aerosol Science, 2014, 69: 150-159.
- [74] QUANT F R, FLAGAN R C, HORTON K D. 13 O 04 implementation of a scanning mobility particle sizer (SMPS) [J]. Journal of Aerosol Science, 1993, 24: S83-S84.
- [75] GROSE M, SAKURAI H, SAVSTROM J, et al. Chemical and physical properties of ultrafine diesel exhaust particles sampled downstream of a catalytic trap[J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(17): 5502-5507.
- [76] LIU Z G, THUROW E M, CALDOW R, et al. Transient performance of diesel particulate filters as measured by an engine exhaust particle size spectrometer [J]. SAE Technical Papers, 2005, 2005-01-0185.
- [77] FUJITANI Y, TAKAHASHI K, FUSHIMI A, et al. Particle number emission factors from diesel trucks at a traffic intersection: Long-term trend and relation to particle mass-based emission regulation[J]. Atmospheric Environment: X, 2020(5): 1-15.
- [78] YOON S, QUIROS D C, DWYER H A, et al. Characteristics of particle number and mass emissions during heavy-duty diesel truck parked active DPF

regeneration in an ambient air dilution tunnel [ J ]. Atmospheric Environment, 2015, 122: 58-64.

- [79] CHENG Y H, KAO Y Y, LIU J J. Correlations between black carbon mass and size-resolved particle number concentrations in the Taipei urban area: A five-year longterm observation [J]. Atmospheric Pollution Research, 2014, 5(1): 62-72.
- [80] TRITSCHER T, BEESTON M, ZERRATH A F, et al. NanoScan SMPS - A novel, portable nanoparticle sizing and counting instrument [J]. Journal of Physics: Conference Series, 2013, 429:1-10.
- [81] YAO X H, LAU N T, FANG M, et al. On the timeaveraging of ultrafine particle number size spectra in vehicular plumes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2006, 6(12): 6825-6839.
- [82] XUE J, LI Y, WANG X L, et al. Comparison of vehicle exhaust particle size distributions measured by SMPS and EEPS during steady-state conditions[J]. Aerosol Science and Technology, 2015, 49(10): 984-996.
- [83] HU Z Y, LU Z Y, SONG B, et al. Impact of test cycle on mass, number and particle size distribution of particulates emitted from gasoline direct injection vehicles[J]. Science of the Total Environment, 2020, 762: 143128.
- [84] IORIO S D, MAGNO A, MANCARUSO E, et al. Characterization of particle number and mass size distributions from a small compression ignition engine operating in diesel/methane dual fuel mode [J]. Fuel, 2016, 180: 613-623.
- [85] YANG B, NING L, CHEN W H, et al. Parametric investigation the particle number and mass distributions characteristics in a diesel/natural gas dual-fuel engine[J]. Applied Thermal Engineering, 2017, 127: 402-408.
- [86] CHIEN S M, HUANG Y J. Sizes and polycyclic aromatic hydrocarbon composition distributions of nano, ultrafine, fine, and coarse particulates emitted from a four-stroke motorcycle[J]. Environmental Letters, 2010, 45(13): 1768-1774.
- [87] CORNETTE J F P, COPPIETERS T, LEPAUMIER H, et al. Particulate matter emission reduction in small- and medium-scale biomass boilers equipped with flue gas condensers: Field measurements [J]. Biomass and Bioenergy, 2021, 148: 1-9.
- [88] LI T K, LIU B S, BI X H, et al. Size and chemical characteristics of particles emitted from typical rural

biomass cookstoves in North China [J]. Atmospheric Research, 2021, 249(30): 105295.

- [89] LIANG B, GE Y S, TAN J W, et al. Comparison of PM emissions from a gasoline direct injected (GDI) vehicle and a port fuel injected (PFI) vehicle measured by electrical low pressure impactor (ELPI) with two fuels: Gasoline and M15 methanol gasoline [J]. Journal of Aerosol Science, 2013, 57: 22-31.
- [90] MARICQ M M, XU N, CHASE R E. Measuring particulate mass emissions with the electrical low pressure impactor [J]. Aerosol Science and Technology, 2006, 40(1): 68-79.
- [91] VIRTANEN A K, RISTIMaKI J M, VAARASLAHTI K, et al. Effect of engine load on diesel soot particles [J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38 (9): 2551-2556.
- [92] WANG X L, GROSE M A, CALDOW R, et al. Improvement of Engine Exhaust Particle Sizer (EEPS) size distribution measurement - II. Engine exhaust particles [J]. Journal of Aerosol Science, 2016, 92: 83-94.
- [93] BAINSCHAB M, LANDL L, ANDERSSON J, et al. Measuring Sub-23 nanometer real driving particle number emissions using the portable down to ten sampling system[J]. Journal of Visualized Experiments, 2020, 159: e61287.
- [94] COMMISSION E. EU 2019/1939 Commission Regulation (EU) [S]. European Union: Official Journal of the European Union, 2019.
- [95] JOSHI A. Review of vehicle engine efficiency and emissions[C]. SAE WCX Digital Summit, 2021.
- [96] JOSHI A. Review of vehicle engine efficiency and emissions[C]. WCX SAE World Congress Experience, 2019.
- [97] GIECHASKIEL B, BONNEL P, PERUJO A, et al. Solid particle number (SPN) portable emissions measurement systems (PEMS) in the European legislation: A review[J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2019, 16(23):4819.
- [98] MAMAKOS A, SCHWELBERGER M, FIERZ M, et al. Effect of selective catalytic reduction on exhaust nonvolatile particle emissions of Euro VI heavy-duty compression ignition vehicles [J]. Aerosol Science and Technology, 2019, 53(8): 898-910.
- [99] GIECHASKIEL B, LÄHDE T, DROSSINOS Y. Regulating particle number measurements from the

tailpipe of light-duty vehicles: The next step? [J]. Environmental Research, 2019, 172: 1-9.

- [100] LÄHDE T, RÖNKKÖ T, VIRTANEN A, et al. Dependence between nonvolatile nucleation mode particle and soot number concentrations in an EGR equipped heavy-duty diesel engine exhaust [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(8): 3175-3180.
- [101] GIECHASKIEL B, MANFREDI U, MARTINI G. Engine exhaust solid Sub-23 nm particles: I. Literature survey [J]. SAE International Journal of Fuels and Lubricants, 2014, 7(3): 950-964.
- [102] GIECHASKIEL B, MARTINI G. Engine exhaust solid sub-23 nm particles: II. Feasibility study for particle number measurement systems [J]. SAE International Journal of Fuels and Lubricants, 2014, 7 (3): 935-949.
- [103] GIECHASKIEL B, CLAIROTTE M, VALVERDE-MORALES V, et al. Framework for the assessment of PEMS (portable emissions measurement systems) uncertainty[J]. Environ Res, 2018, 166: 251-260.
- [104] PELKMANS L, DEBAL P. Comparison of on-road emissions with emissions measured on chassis dynamometer test cycles [J]. Transportation Research Part D: Transport and Environment, 2006, 11(4): 233-241.
- [105] WEISS M, BONNEL P, HUMMEL R, et al. On-road emissions of light-duty vehicles in europe [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(19): 8575-8581.

#### 作者简介



关泽,2021年于河南科技大学获得学士 学位,现为河南科技大学硕士研究生,主要 研究方向为移动源颗粒物排放控制,车用发 动机低碳燃料燃烧机理。

E-mail: 171403160305@ stu. haust. edu. cn

Guan Ze received his B. Sc. degree from

Henan University of Science & Technology in 2021. He is currently a M. Sc. candidate at Henan University of Science & Technology. His main research interests include particle emissions from mobile sources, and the combustion mechanism of low-carbon-content fuels for vehicle engines.



范晨阳(通信作者),2009年于河南科 技大学获得学士学位,2012年于河南科技大 学获得硕士学位,2019年于天津大学获得博 士学位,现为河南科技大学副教授,主要研 究方向为移动源颗粒物形成和氧化机理、演

变机制研究,发动机高效清洁燃烧和代用燃料研究。 E-mail: fanchenvang@tju.edu.cn

combustion of alternative fuels for vehicle engines.

**Fan Chenyang** (Corresponding author) received her B. Sc. degree and M. Sc. degree both from Henan University of Science & Technology in 2009 and 2012, and received her Ph. D. degree from Tianjin University in 2019. She is currently an assistant professor at Henan University of Science & Technology. Her main research interests include formation and oxidation mechanisms of particle emissions from mobile source and the study on clean



付政,2009年于河南科技大学获得学士 学位,2019年于河南科技大学获得工程硕士 学位,现为洛阳西苑车辆与动力检验所有限 公司发动机试验部部长,主要进行发动机四 阶段标定及发动机排放相关测试工作。

E-mail:fuzhengcs@126.com

**Fu Zheng** received his B. Sc. degree from Henan University of Science & Technology in 2009, M. Sc. degree from Henan University of Science & Technology in 2019. He is currently a section chief at Luoyang Xiyuan Vehicle and Power Inspection Institute Co. His main work includes performance testing and inspection of engines for non-road China-4 emission regulation.