

柴油发动机尾气纳米颗粒演变的 TEMOM-LES 模型

刘慧洁^{1,2}, 于明州³, 尹招琴¹, 江影³

1. 中国计量学院计量测试工程学院, 杭州 310027
2. 香港理工大学机械工程学系, 香港 999077
3. 中国计量学院理学院, 杭州 310027

摘要 中国雾霾主要成因是包括柴油发动机在内的污染源排放导致的二次颗粒物, 本文针对柴油发动机尾气排放的颗粒物进行研究, 主要关注极大数目微纳米颗粒的综合效应导致的颗粒参数的变化, 次了解根据不同柴油含硫标准下产生的颗粒物的分布情况。通过把针对尺度谱演变问题的泰勒展开矩方法(TEMOM)和大涡模拟方法(LES)技术进行结合, 研究了排气管附近柴油二次颗粒物的演变过程, 并在相同流动工况条件下, 对加拿大、新加坡、欧盟、美国、俄罗斯、中国和日本不同国家和地区不同柴油含硫标准所导致的二次颗粒物的总颗粒数浓度、总体积浓度和颗粒大小进行了对比研究。结果显示, 颗粒物在近排气管处主要分布在射流剪切层, 颗粒数浓度和颗粒直径的最大值在距离喷嘴0.6 m附近产生, 在射流下游, 射流与下游空气混合稀释效应明显, 颗粒数浓度和颗粒直径趋于一稳定值。通过研究时间平均颗粒场的分布发现, 低燃硫量柴油尾气产生的颗粒数浓度比高燃硫量产生的颗粒数浓度低4个数量级, 产生的颗粒体积浓度最大相差6个数量级。

关键词 大涡模拟; 泰勒展开矩方法; 尾气; 均匀成核; 低燃硫量; 纳米颗粒

中图分类号 O359⁺.2

文献标志码 A

doi 10.3981/j.issn.1000-7857.2015.06.010

Evolution of nano-particles within a diesel car exhaust plume via TEMOM-LES method

LIU Huijie^{1,2}, YU Mingzhou³, YIN Zhaoqin¹, JIANG Ying³

1. College of Metrology and Measurement Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310027, China
2. Department of Mechanical Engineering, The Hong Kong Polytechnic University, Hong Kong 999077, China
3. College of Science, China Jiliang University, Hangzhou 310027, China

Abstract A study on the evolution of secondary nanoparticles in a diesel engine exhaust is presented, coupling the large eddy simulation (LES) and the Taylor expansion method of moments (TEMOM), with the aim to reveal the differences in total particle number concentration, volume concentration and geometric mean diameter of diesel engines from Canada, Singapore, European, USA, Russia, China and Japan. The investigated aerosol system involved nanoparticle diffusion, nucleation, coagulation and condensation. The nucleation model is the binary homogeneous nucleation of water-acid system, which is valid for the engine exhaust dilution conditions. Considering the particle diameter range in the particle evolution, the free molecule regime coagulation formula is used. The particle condensation growth rate is obtained by calculating the arrival and loss of acid molecules at the entire particle surface. Five different diesel fuel sulfur contents, 10, 15, 30, 50, 350 mg/kg, are chosen as the initial conditions to investigate the particle evolution. It is shown that particles mainly form in the exhaust shear layer while the maximum values of particle number

收稿日期: 2015-02-09; 修回日期: 2015-03-05

基金项目: 国家自然科学基金项目(11372299); 浙江省自然科学基金项目(LY13E080007)

作者简介: 刘慧洁, 硕士研究生, 研究方向为颗粒尺寸分布演变、纳米颗粒测量技术, 电子信箱: liuhuijie_456@163.com; 于明州(通信作者), 副教授, 研究方向为气溶胶力学、多相流体动力学, 电子信箱: yumz@ieecas.cn

引用格式: 刘慧洁, 于明州, 尹招琴, 等. 柴油发动机尾气纳米颗粒演变的TEMOM-LES模型[J]. 科技导报, 2015, 33(6): 64-68.

concentration and particle diameter appear in the downstream 0.6 m from the tailpipe. It is obvious that the fuel sulfur content has a significant effect on the formation of secondary nanoparticles. The total particle number concentration and total volume concentration are about four and six orders of magnitude smaller in the lowest fuel sulfur standard than those in the highest fuel sulfur standard, respectively.

Keywords large eddy simulation; Taylor expansion method of moments; exhaust; homogeneous nucleation; low fuel sulfur content; nanoparticles

随着近年汽车发动机机内和机外净化技术的发展^[1],废气循环装置的添加以及各国政府对燃料新规范、排放标准的实施^[2],单辆汽车的尾气排放颗粒质量浓度已有明显下降。但是,汽车尾气对超细微颗粒,尤其是对直径小于 100 nm 的纳米颗粒的贡献仍很大。此类型的纳米颗粒在空气中极易经过物理、化学变化,成长为较大体积的二次颗粒物^[3]。最近的研究结果表明,包括柴油发动机在内的污染源排放导致的二次颗粒物,是中国雾霾成因的主要原因^[4,5]。

源自道路汽车和柴油车排放导致的纳米颗粒,在城市大气颗粒物数浓度中的比例较大。在道路附近的特定区域,车辆颗粒物排放量可以占城市区域 PM₁₀ 或 PM_{2.5} 的 80% 左右^[6]。相对于汽油发动机,柴油发动机由于功率较大、燃烧不充分和柴油的本身属性问题,更易产生微纳米量级颗粒物。尤其是,柴油车在中型重型运输车中的比例较高^[7];随着清洁燃料的推广,其在欧洲家用车中的市场份额也在增加;柴油车在带来良好的动力性的同时,其颗粒数排放量大概是火花打火引擎(汽油车)的 10 倍,颗粒数浓度是汽油车的 100 倍左右^[2,8]。

针对发动机尾气中的颗粒物的研究,极大数目微纳米颗粒所表现出的综合效应是关注的焦点。目前,通过耦合流场控制方程和基于概率统计思想的 Smoluchowski 平均场方程,已经成为解决该问题的有效途径^[9]。基于经典 Smoluchowski 平均场理论和多相湍流动力学, Yu 等^[9,10]首次提出了采用泰勒展开技术处理难以封闭的 Smoluchowski 方法的求解,并成功应用于汽车尾气二次生成颗粒污染物物理、化学过程的研究^[3]。

此次研究主要采用泰勒展开矩方法(TEMOM)和大涡模拟法(LES)耦合的数值模拟方法,针对不同柴油含硫标准所导致的二次颗粒物在尾气中的演化过程进行研究,并定量分析不同含硫标准情况下纳米颗粒数浓度、体积浓度等特征量的区别。在数学模型的研究中,尾气中气体相采用基于连续介质假设的大涡模拟法来求解尾喷流的外流场;针对颗粒相,则采用基于介尺度问题的物理模型,即 TEMOM 来求解。上述模型可以有效地描述尾喷流中新颗粒的形成,以及由于凝并、冷凝导致的颗粒的增长等动力学问题^[8]。另外,本文研究的尾气流动工况条件选取车辆正常行驶过程,因此,本研究具有普适性。

1 计算模型

本文只研究尾气排放后的颗粒物的生成和后期在大气

中的演变情况。因此,计算区域模型中不包括前段排气系统,如图 1 所示,从上往下分别是排气管尾喉后端(图 1 蓝色)、外流场计算域(图 1 橙色)以及出口(图 1 红色),两端边界条件分别赋予速度入口和流出口。计算采用的网格为六面体结构化网格,并在关键部位,即轴心和近喷口附近加密,总网格数目为 51.9 万,具体网格分布如图 1 所示。计算流场为非稳态不可压流场,故选用基于压力的不可压缩求解器,压力速度的耦合采用 Simple 算法,湍流模型选用基于对流动的涡识别的大涡模拟法。计算模型和网格的设置,可以确保流场计算的可靠性。入口雷诺数 Re 定为 1257.67。

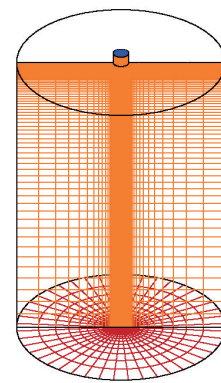


图 1 3D 流场计算区域模型及网格分布
Fig. 1 3D calculation area of flow field and mesh distribution

大涡模拟的基础思想是将流动分解为两部分:一部分包括大尺寸的结构,其受流动的影响比较显著,另一部分包括各向同性的小尺寸结构。对流场采用大涡模拟分解后,质量连续方程和动量方程为

$$\frac{\partial \bar{u}_i^*}{\partial x_i^*} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \bar{u}_i^*}{\partial t^*} + \bar{u}_j^* \frac{\partial \bar{u}_i^*}{\partial x_j^*} = \nu \frac{\partial^2 \bar{u}_i^*}{\partial x_j^* \partial x_j^*} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{P}^*}{\partial x_i^*} + \frac{\partial \tau_{ij}^*}{\partial x_j^*} \quad (2)$$

式中, \bar{u}_i^* 为过滤后的速度; \bar{P}^* 为过滤后的压强, 指数 i, j 被看作 1, 2, 指 x 和 y 的方向; ν 为运动黏度, ρ 为气体密度, 其在不可压流场中是一个定值。 $\tau_{ij}^* = \rho \bar{u}_i^* \bar{u}_j^* - \rho \bar{u}_i^* \bar{u}_j^*$ 是子网格尺寸压力。子网格尺寸的模型是 Smagorinsky-Lily 模型。即

$$\tau_{ij}^* - \frac{1}{3} \tau_{kk}^* \delta_{ij} = 2\nu_i \bar{s}_{ij} \quad (3)$$

式中, ν_i 为子网格尺度湍黏度, τ_{kk}^* 为各向同性子网格应力, δ_{ij} 为克罗内科符号, \bar{s}_{ij} 为应变张量的过滤速率:

$$\bar{s}_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \bar{u}_i^*}{\partial x_j^*} + \frac{\partial \bar{u}_j^*}{\partial x_i^*} \right), \quad v_i = (C_s \Delta)^2 |\bar{s}_{ij}| \quad (4)$$

式中, C_s 为 Smagorinsky 常数, 计算中等于 0.1, Δ 为局部子网格尺寸, 并且

$$|\bar{s}_{ij}| = \sqrt{2s_{ij}s_{ij}}, \quad \Delta = (\Delta x^* \Delta y^*)^{1/2} \quad (5)$$

颗粒物生成和后期演变过程的模拟, 则通过引入针对颗粒尺度谱演变问题的泰勒展开矩方法实现。该方法可以很容易地处理颗粒的生成过程、凝并过程、冷凝和颗粒表面的蒸发等动力学过程, 并通过与流场耦合^[3,11], 可以实现对尾气中颗粒物演变问题的研究。在这一模型中, 颗粒的成核采用硫酸-水蒸汽系统的二元均匀成核理论^[12]; 凝并过程则考虑到颗粒演化过程中颗粒粒径小于 20 nm, 采用自由分子区的颗粒碰撞函数表达式。最终, 通过引入泰勒展开矩方法, 可以得到针对颗粒相的控制方程:

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_k}{\partial t} = & -\frac{\partial(u_j + u_{(h)j})m_k}{\partial x_j} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\Gamma \frac{\partial m_k}{\partial x_j} \right) + J(v^*)v^{*k} \\ & + k B_2 \eta m_{k-1/3} \alpha + \left(\frac{\partial m_k}{\partial t} \right)_{凝并} \quad (k=0, 1, 2) \end{aligned} \quad (6)$$

式中, u 为流场的速度, $u_{(h)}$ 为热迁移速度, Γ 为扩散系数, J 为成核率, v^* 为均质晶核化成核的最小体积, B_2 为与温度相关的表征冷凝的系数, α 为水和氢氧化物对颗粒生长的影响的放大系数。

将式(6)最后 1 项凝并项进行 3 阶泰勒级数展开可得:

$$\left(\frac{\partial m_0}{\partial t} \right)_{凝并} = \frac{\sqrt{2} B_1 (65 m_2^2 m_0^{23/6} - 1210 m_2 m_1^2 m_0^{17/6} - 9223 m_1^4 m_0^{11/6})}{5184 m_1^{23/6}} \quad (7a)$$

$$\left(\frac{\partial m_1}{\partial t} \right)_{凝并} = 0 \quad (7b)$$

$$\left(\frac{\partial m_2}{\partial t} \right)_{凝并} = -\frac{\sqrt{2} B_1 (701 m_2^2 m_0^{11/6} - 4210 m_2 m_1^2 m_0^{5/6} - 6859 m_1^4 m_0^{-1/6})}{2592 m_1^{11/6}} \quad (7c)$$

式中, B_1 为与温度和颗粒数密度相关的参数。

本研究采取 Pratsinis 等^[13]使用的方法进行无量纲化, 具体参数对照如表 1 所示。

表 1 无量纲参数对照

Table 1 Non-dimensional terms

参数	含义
$\tau = \left[n_s s_1 (K_b T / 2\pi m_a) \right]^{-1}$	颗粒增长的特征时间, 其中 s_1 为硫酸分子的表面积, K_b 为玻尔兹曼常数, n_s 为气相中硫酸分子的参考浓度, m_a 为硫酸分子质量
$t^* = t/\tau$	无量纲时间
$m_k^* = m_k/n_s v_a^k$	无量纲 k 阶矩, 其中 v_a 为硫酸分子体积
$J^*(v^*) = \frac{J(v^*)}{n_s/\tau}$	无量纲成核率
$\eta = \frac{Y_1}{n_s}$	硫酸蒸汽分子浓度
$k^* = N_{tot}^* x^*$	超临界分子串中硫酸蒸汽分子的个数, 其中 N_{tot}^* 、 x^* 分别为超临界分子串中分子的总个数和超临界分子串中硫酸蒸汽分子的摩尔分数
R^*	硫酸蒸汽分子的生成率

无量纲化处理后, 矩方程缩减为

$$\frac{\partial m_0^*}{\partial t^*} = J^*(v^*) + \frac{\sqrt{2} (65 m_2^{*2} m_0^{*23/6} - 1210 m_2^* m_1^{*2} m_0^{*17/6} - 9223 m_1^{*4} m_0^{*11/6})}{5184 m_1^{*23/6}} \quad (8a)$$

$$\frac{\partial m_1^*}{\partial t^*} = J^*(v^*) \frac{v^*}{v_a} + \eta m_{2/3}^* \alpha \quad (8b)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_2^*}{\partial t^*} = & J^*(v^*) \left(\frac{v^*}{v_a} \right)^2 + \\ & 2\eta m_{5/3}^* \alpha - \frac{\sqrt{2} (701 m_2^{*2} m_0^{*11/6} - 4210 m_2^* m_1^{*2} m_0^{*5/6} - 6859 m_1^{*4} m_0^{*-1/6})}{2592 m_1^{*11/6}} \end{aligned} \quad (8c)$$

同理, 硫酸分子浓度的变化经无量纲后为

$$\frac{\partial \eta}{\partial t^*} = R^* - J^*(v^*) k^* - m_{2/3}^* \eta \quad (9)$$

2 计算结果与讨论

目前, 各国推行的新的含硫标准的柴油, 具体见表 2, 世界燃料规范对柴油的含硫量要求分 4 级, 分别是 5000、300、30 和 0 mg/kg^[14], 其中加拿大、新加坡和美国执行的含硫标准已达到世界燃料规范的 III 级要求, 欧盟和日本接近 III 级要求, 中国和俄罗斯有燃料低硫化的趋势但是现行标准处于 II 级要求。本文结合各国的含硫标准分别选取含硫量为 10、15、30、50 和 350 mg/kg 5 种情况来研究柴油发动机汽车尾气颗粒的演变特征。根据二元均匀成核理论, 需要根据燃油的不同含硫量转化为对应的尾气中的硫酸根的质量浓度^[10]:

$$\begin{aligned} [\text{SO}_4]_{mc} = & \left(\frac{F}{A} \right) (\text{燃油含硫量}(\%)) (\text{S至SO}_4\text{转化率}(\%)) \left(\frac{M_{\text{SO}_4}}{M_{\text{尾气}}} \right) \left(1 - \frac{F}{A} \right) \rho_{\text{尾气}} \end{aligned} \quad (10)$$

表2 各国执行的柴油的含硫标准
Table 2 Maximum sulfur limits for diesel fuel in different countries

地区	最高含硫标准/(mg·kg ⁻¹)	开始执行时间
加拿大	15	2006
新加坡	10	2013-07
欧盟	30~50	2005
美国	15	2006
俄罗斯	350	—
	10	2015
中国	350	2011-07
	50	—
日本	50	2005

式(10)中, $\frac{F}{A}$ 为尾气的燃气比,取0.035; M_{SO_4} 和 $M_{尾气}$ 分别为硫酸根的相对分子质量 96 g/mol 和尾气的平均相对分子质量 30 g/mol, $\rho_{尾气}$ 为尾气的密度, 1.186 kg/m³。本文采用的硫酸-水系统使用的是硫酸根的数量浓度, 结合 M_{SO_4} 和阿伏伽德罗常数 $NA(6.02 \times 10^{23})$ 计算得到硫酸根的数量浓度:

$$[SO_4]_{nc} = \frac{[SO_4]_{mc}}{M_{SO_4}} \cdot NA \quad (11)$$

对于选取的 5 种不同的含硫量燃料 10、15、30、50 和 350 mg/kg 对应的 $[SO_4]_{nc}$ 分别是 3.2×10^{18} 、 4.8×10^{18} 、 9.6×10^{18} 、 1.6×10^{19} 和 $1.12 \times 10^{20} m^{-3}$ 。

2.1 颗粒演变过程

图2为含硫量为 350 mg/kg 时总的颗粒数浓度(a)和颗粒直径(b)在不同时刻的截面分布图, 图2(c)为对应的涡量图。从图2(a)、(c)的对比发现, 颗粒物在近喷口处主要分布在射流的剪切层附近, 说明颗粒物主要在近喷口处产生。颗粒物跟随气体向下游传播, 其在空间的分布也愈来愈不规则, 并且由于周围气体的混合效应, 颗粒数浓度在下游明显降低。图2(b)显示, 随着气体从近喷口到下游发展, 颗粒的大小也在相应增加。主要原因是, 在近喷口附近, 如图2(a)所示, 颗粒的数浓度非常大, 在此情况下, 颗粒间的凝并效应明显, 从而导致颗粒体积的相应增加。但是, 有必要指出, 新生成颗粒物, 在近喷口附近的颗粒数浓度的减少, 主要是由于颗粒间的凝并导致; 在尾气的下游远离喷口位置, 颗粒数

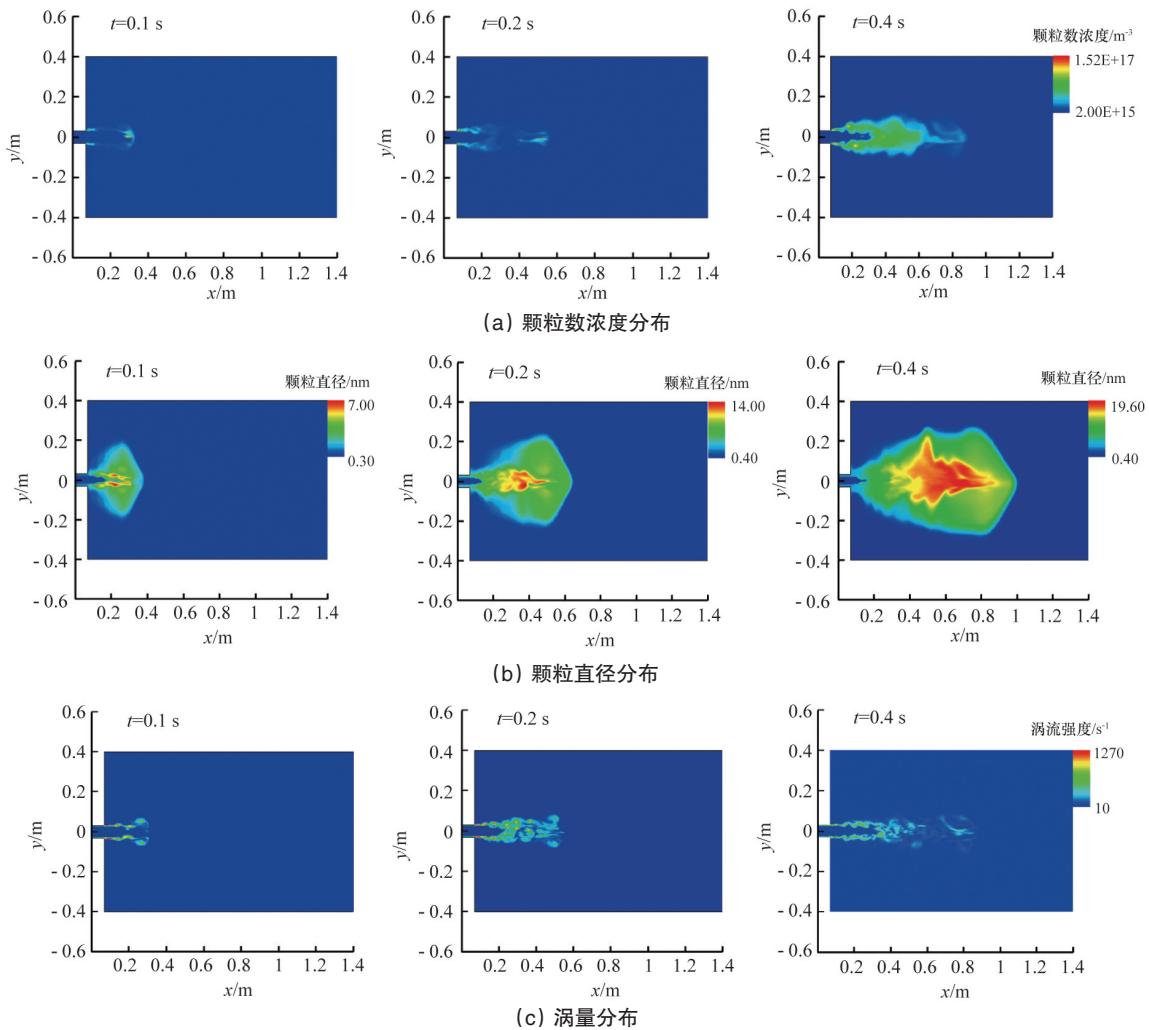


图2 在不同时间下 $z=0$ 的 x - y 平面的颗粒演变

Fig. 2 Instantaneous contours of particles in x - y plane ($z=0$) at different times

浓度的下降应该归因于颗粒物与周围空气的混合导致的稀释效应。

2.2 时间平均颗粒场

如图3(a)显示,不同燃硫量下尾气产生的颗粒在排气管尾喉外流场中心线上的零阶矩总颗粒数浓度 m_0 的分布情况。颗粒数浓度在中心轴线处的尾气浓度变化趋势一致,在靠近尾喉0.2 m的位置以内颗粒浓度基本为零。主要原因是,在这一区域,颗粒主要分布在射流的剪切层附近,在尾喷口中心位置由于较高的温度,没有产生颗粒物。随后,颗粒数浓度增加至一稳定值后,然后慢慢降低。对比5种情况发现,随着燃硫量的降低,尾气产生的颗粒数浓度数值明显降低。这与Yu等^[10]在2009年的研究结果一致。随着燃硫量的降低,最大颗粒数浓度值的位置也在往下游方向移动,且曲

线变化趋于平缓,含硫量为10 mg/kg时最大浓度值出现在距离尾喉1.2 m的位置。清洁能源推广的低含硫标准柴油产生的颗粒数浓度比中国现行的含硫标准350 mg/kg的柴油产生的颗粒数浓度低3~4个数量级,如图3(a)所示。图3(b)显示了一阶矩总颗粒体积浓度 m_1 沿中心线处的时间平均分布情况。与图3(a)一致,总的颗粒体积浓度随着燃油含硫量的增加而明显增加。有必要指出,对比5种含硫标准下,尾气中所产生的颗粒数浓度最大相差近4个数量级,而总的体积浓度相差近6个数量级。这一情况说明,目前世界上存在的不同含硫标准,将导致完全不同的纳米颗粒排放量。图3(c)为体积平均颗粒直径沿中心线的变化,这与总的颗粒数浓度变化类似,增加含硫量会使颗粒的粒径增大。

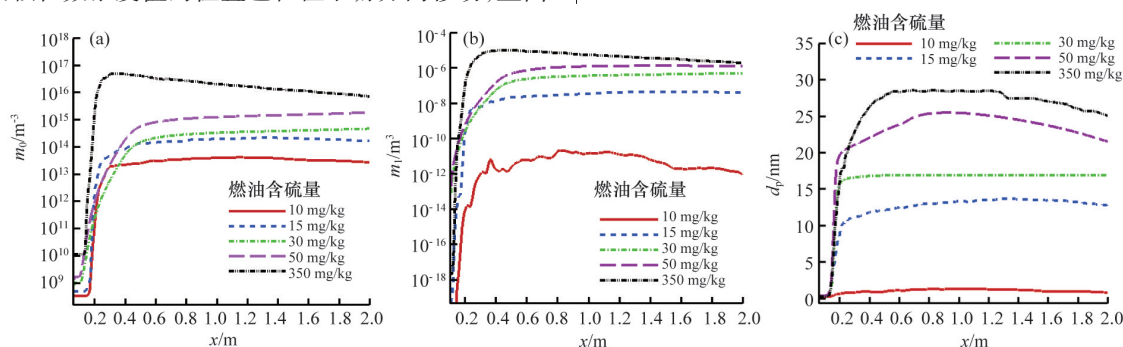


图3 不同燃硫量下中心轴线的参数 m_0 、 m_1 、 d_p 分布

Fig. 3 Time-averaged contours of the zero moment m_0 , the first moment m_1 and the particle diameter d_p on the axis at different fuel sulfur contents

3 结论

将大涡模拟和泰勒展开矩方法结合应用于柴油尾气纳米颗粒的演变过程研究。研究发现,颗粒物在近喷口处主要分布在射流剪切层,颗粒数浓度和颗粒物直径的最大值在距离喷嘴0.6 m附近产生,射流下游射流与下游空气混合稀释效应明显,颗粒数浓度和颗粒直径趋于一稳定值。通过研究不同国家含硫标准情况下的颗粒排放问题,发现低燃硫量柴油尾气产生的颗粒数浓度比高燃硫量产生的颗粒数浓度低近4个数量级,产生的颗粒体积浓度也明显降低。

参考文献(References)

[1] 陈友方, 曹建国, 牟小云, 等. 汽车发动机原理与汽车理论[M]. 重庆: 重庆大学出版社, 2003: 161-171.
Chen Youfang, Cao Jianguo, Mou Xiaoyun, et al. Automotive principle and theory[M]. Chongqing: Chongqing University Press, 2003: 161-171.

[2] Myung C L, Park S. Exhaust nanoparticle emissions from internal combustion engines: A review[J]. International Journal of Automotive Technology, 2012, 13(1): 9-22.

[3] Yu M Z, Lin J Z, Chan T L. Numerical simulation for nucleated vehicle exhaust particulate matters via the TEMOM/LES method[J]. International Journal of Modern Physics C, 2009, 20(3): 399-421.

[4] Guo S, Hu M, Zamora M L, et al. Elucidating severe urban haze formation in China[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2014, 111(49): 17373-17378.

[5] Li N, Fu T M, Cao J, et al. Sources of secondary organic aerosols in the Pear River Delta region in fall: Contributions from the aqueous reactive uptake of dicarbonyls[J]. Atmospheric Environment, 2013, 76: 200-207.

[6] Kumar P, Pirjola L, Ketzler M, et al. Nanoparticle emissions from 11 non-vehicle exhaust sources: A review[J]. Atmospheric Environment, 2013, 67: 252-277.

[7] 王贺武, 刘浩学. 柴油车烟雾排放量测试新方法[J]. 交通运输工程学报, 2002, 2(4): 43-48.
Wang Hewu, Liu Haoxue. The new measurement method of diesel car smoke emission[J]. Journal of Transportation Engineering, 2002, 2(4): 43-48.

[8] Kittelson D B. Engines and nanoparticles: A review[J]. Journal of Aerosol Science, 1998, 29(5/6): 575-588.

[9] Yu M Z, Lin J Z, Chen L H, et al. Large eddy simulation of planar jet flow with nanoparticle coagulation[J]. Acta Mechanica Sinica, 2006, 22(4): 293-300.

[10] Yu M Z, Lin J Z, Chen L H. Nanoparticle coagulation in a planar jet via moment method[J]. Applied Mathematics and Mechanics, 2007, 28(11): 1445-1453.

[11] Uhrner U, Lewis S V, Vehkamaki H, et al. Dilution and aerosol dynamics within a diesel car exhaust plume—CFD simulations of on-road measurement conditions[J]. Atmospheric Environment, 2007, 41: 7440-7461.

[12] Vehkamaki H, Kulmala M, Jlehtinen K E. Modeling binary homogeneous nucleation of water-sulfuric acid vapours: Parameterization for high temperature emissions[J]. Environment Science and Technology, 2003, 37(15): 3392-3398.

[13] Pratsins S E. Simultaneous nucleation, condensation, and coagulation in aerosol reactor[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1988, 124(2): 416-417.

[14] 韩德奇, 常聪芳, 陈明, 等. 柴油低硫技术及对我国柴油低硫化的建议[J]. 石油化工技术经济, 2003, 19(4): 8-10.
Han Deqi, Chang Chongfang, Chen Ming, et al. Low sulfur technology diesel and diesel low sulfide suggestions to our country[J]. Techno-Economics in Petrochemicals, 2003, 19(4): 8-10.

(责任编辑 吴晓丽)