

Elmeri Laakkonen

**HIUKKASHÄVIÖT DIFFUUSIOON
PERUSTUVASSA
AEROSOLIKOKOLUOKITTELIJASSA**

Kandidaatintyö
Tekniikan ja luonnontieteiden tiedekunta
Toukokuu 2020

TIIVISTELMÄ

Elmeri Laakkonen: Hiukcashäviöt diffuusioon perustuvassa aerosolikokoluokittelijassa
Kandidaatintyö
Tampereen yliopisto
Tekniikan ja Luonnontieteiden TkK-tutkinto-ohjelma, Teknis-luonnontieteellinen
Toukokuu 2020

Tässä kandidaatintyössä tarkastellaan diffuusioilmiöön perustuvaa aerosolihiukkasten kokoluokittelulaitetta ja laitteessa tapahtuvia diffuusiosta johtuvia hiukcashäviöitä. Laite mahdollistaa nanometriä kokoisten hiukkasten luokittelun niiden liikkuvuudesta riippuvan diffuusiokertoimen perusteella. Hiukkasen liikkuvuus voidaan edelleen yhdistää sen fyysiseen kokoon, joten tätä ominaisuutta hyödyntäen laite toimii hiukkasten kokoluokittelijana.

Nykyisin yleisesti käytettyihin sähköisiin luokittelumenetelmiin verrattuna diffuusioon perustuvan luokittelun etuna on sen riippumattomuus hiukkasen sähköisistä ominaisuuksista. Hiukkasten teoreettinen varaustehokkuus laskee huomattavasti hiukkaskoon pienentyessä. Bipolaarinen varaustehokkuus 10 nm hiukkasille on noin 10% ja 3 nm hiukkasille noin 1%. Sähköiset luokittelijat voivat luokitella samanaikaisesti hiukkasia, joilla on vain toisen polariteetin varaus, siis käytännössä korkeintaan 5% 10 nm hiukkasista ja 0.5% 1 nm hiukkasista. Työssä esitetty diffuusioluokittelija kykenee luokittelemaan myös varaamattomia hiukkasia. Diffuusion satunnaisuudesta johtuen työssä käsitellyn luokittelulaitteen teoreettinen hiukkasen koosta ja varauksesta riippumaton maksimiläpäisy on noin 10%. Osana työssä tehtävää mallinnusta esitetään teoreettinen luokittelufunktio työssä tutkitun laitteen kaltaiselle tasogeometrialle.

Laitteen kokonaisläpäisyä on tutkittu kokeellisin mittauksin. Kokeellisissa mittaustuloksissa laitteen kokonaisläpäisyn havaittiin olevan heikko, korkeintaan noin 2%, joka on noin 20 % luokittelun teoreettisesta maksimista. Tässä työssä pyritään selittämään havaittua tulosta mallintamalla laitteen sisäisiä hiukcashäviöitä. Työssä hiukcashäviöinä käsitetään muusta kuin luokittelusta johtuva laitteen läpäisytehokkuuden heikkeneminen. Häviöitä arvioidaan soveltaen laitteen näytteensyötön ja poistomekanismin komponenteille yksinkertaisille geometrioille johdettuja diffuusioyhtälön ratkaisuja. Dominoivana häviötä aiheuttavana mekanismina oletetaan diffuusiosta johtuva hiukkasten depositio virtauskanavien seinämille ja muut häviömekanismit sivuutetaan merkityksettöminä mallinnettavan kokonaishäviön kannalta.

Työssä esitetyn luokittelu- ja häviömallinnuksen tuloksia verrataan kokeellisiin mittaustuloksiin. Mallin havaitaan kuvaavan laitteen hiukcashäviöitä melko hyvin, mutta kokeellisten mittaustulosten suuri hajonta heikentää mallinnuksen luotettavuutta. Tarkempi mallinnus vaatisi laitteen virtausdynamiikan tutkimista esimerkiksi numeerisen laskennan avulla. Kokeellisten ja mallinnettujen tulosten eroista voidaan päätellä laitteen olevan herkkä epäideaalisuuksille. Mittaustilanteessa havaittua laitteen virtaustoiminnan epävakautta voitaisiin parantaa tarkemmin sijoitettavalla ja keskittävällä näytteensyöttömekanismilla. Laitteen heikon läpäisytehokkuuden voidaan todeta johtuvan suurista diffuusiohäviöistä, jotka ovat seurausta laitteen näytteensyötön ja luokittelun hiukkaskoon poistomekanismin geometrioista. Työssä tutkitun laitteen läpäisytehokkuuden merkittävä parantaminen esitetyn kaltaista rakennetta käyttäen on käytännössä mahdotonta.

Avainsanat: hiukkanen, häviö, diffuusio, aerosoli, kokoluokittelu, luokittelija

Julkaisun alkuperäisyys on tarkastettu *Turnitin OriginalityCheck* -palvelulla.

EXECUTIVE SUMMARY

Elmeri Laakkonen: Particle losses in a diffusion based aerosol particle size classifier
 Bachelor's Thesis
 Tampere University
 Degree Programme in Engineering and Natural Sciences, BSc (Tech), Science and Engineering
 May 2020

This bachelor's thesis is about internal particle losses of a diffusion based aerosol particle size classifier device. The device enables classification of nanometer sized particles based on their mobility dependent diffusion coefficient. The mobility of a particle can be further connected with its size and therefore using this property the device acts as a particle size classifier. Compared to the commonly used electrical classification methods, the advantage of diffusion-based classification is its independence from the electrical properties of the particle.

The theoretical charge efficiency of particles decreases significantly as the particle size decreases. The theoretical bipolar total charge efficiency for 10 nm particles is about 10% and for 1 nm particles about 1% (Flagan 2011). Electric classifiers like the DMA are able to classify only either positively or negatively charged fraction of these particles, effectively halving the maximum classifiable fraction of the particles to 5% of 10 nm and 0.5% of 1 nm particles. The diffusion classifier studied in this work is also able to classify the non-charged portion. Due to the random nature of diffusion, the theoretical maximum value of the transfer function of the classifier without particle losses is about 10% for all particle sizes. As the diffusion based classification does not depend on particle's size or charge, this method provides better particle transmission for nanometre-sized particles.

In this work, a theoretical classification function for a planar geometry similar to the device presented by Arffman et al. (2017) was modeled. The operation of the device is dictated by the particle diffusion coefficient D , which for an aerosol particle can be expressed as

$$D = \frac{k_B T C_c}{3\pi C_c d_p}, \quad (1)$$

where k_B is the Boltzmann constant, T is the temperature, C_c is the Cunningham slip correction coefficient and d_p the particle diameter. One dimensional textbook solution for local concentration of a particle sheet released at $x_0 = 0$ at $t = 0$ at a distance x has always a maximum which depends on the particle's diffusion coefficient as follows:

$$D = \frac{x^2}{2t}. \quad (2)$$

This property can be used in designing classifier device based on the diffusion. A simple model of classifying chamber utilizing this technique and a planar geometry prototype device based on the idea are shown in Figure 1.

The total particle transfer function of this device has been studied by experimental measurements. The measured transfer function maximum was at most 2%, which is approximately 20% of the theoretical maximum. The aim of this work is to explain the observed result by modeling the internal particle losses of the device. Based on the work, particle losses in the sample inlet and classified size outlet systems are found to be the main reason for the decrease in the particle transfer function. The losses were estimated by applying solutions of the diffusion equation derived for simple geometries to components of the sample inlet and outlet systems of the device. The dominant loss-causing mechanism was assumed to be the deposition of particles on the walls of the flow channels due to diffusion, and other loss mechanisms were ignored as negligible to the modeled total loss. Typical transfer function of the device and the individual components of the model derived in this work are presented in Figure 2.

The results of the classification and loss modeling presented in the work were compared with

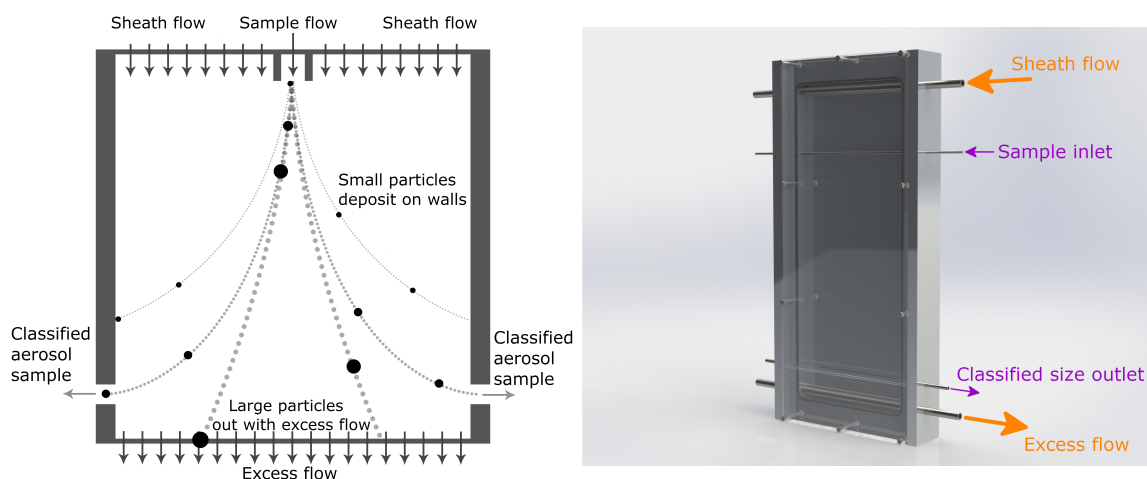


Figure 1. 1D model of the classifying chamber adapted from Arffman et al. (2017) and a 3D rendering of the prototype device studied

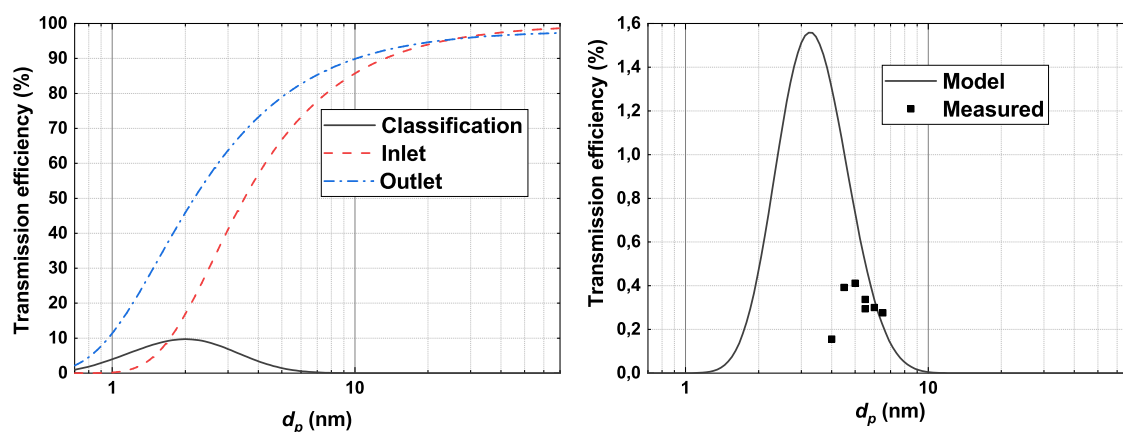


Figure 2. Typical transfer function of the device and the individual components of the model as a function of the particle diameter d_p . Sample flow 2 l/min, total flow 6 l/min.

the experimental measurement results. The model was found to describe the particle losses of the device quite well, but the large deviation of the experimental measurement results indicated instability of the prototype device. More accurate modeling would require examining the flow dynamics of the device using, for example, methods of computational fluid dynamics. From the differences between the experimental and modeled results, it can be concluded that the device is sensitive to geometry unidealities. The instability of the flow of the device observed in the measurement situation could be improved by a more precisely positioned and centered sample inlet mechanism. The low particle transmission efficiency of the device can be attributed to the large diffusional particle losses resulting from the geometries of the device sample inlet and the classified particle size outlet mechanism. A significant improvement in the transmission efficiency with the chosen geometry is practically impossible.

References

- Arffman, A., Juuti, P. Harra, J. and Keskinen J. (2017). Differential diffusion analyzer. *Aerosol Science and Technology* 51:12, 1429-1437. DOI: 10.1080/02786826.2017.1367089.
- Flagan, R. C. (2011). *Electrical Mobility Methods for Submicrometer Particle Characterization*. *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*. John Wiley & Sons, Ltd. Chapter 15, 339-364. DOI: 10.1002/9781118001684

ALKUSANAT

Tämä kandidaatintyö perustuu Arffman et al. (2017) esittämään ideaan uudenlaisesta aerosolien luokittelulaitteesta ja tämän idean pohjalta toteutettuun prototyypilaitteeseen. Työ osoittautui laajemmaksi kokonaisuudeksi kuin alunperin oletin, mutta opin prosessin aikana myös paljon uutta.

Kiitän Tampereen yliopiston aerosolifysiikan laboratorion väkeä mukavasta työilmapiiristä ja mahdollisuudesta tehdä tutkimusta mielenkiintoisen aiheen parissa. Erityisesti kiitän professori Jorma Keskistä ja Antti Rostedia työn ohjauksesta sekä Anssi Järvistä avusta työn aihepiiriin liittyen. Lisäksi haluan kiittää ystäviäni tuesta ja painostuksesta kirjoitusprosessiin liittyen.

Tampereella, 4. toukokuuta 2020

Elmeri Laakkonen

Tämä työ on saanut rahoitusta Euroopan unionin tutkimuksen ja innovoinnin Horizon 2020 -puiteohjelman TUBE-hankkeesta (sopimus No 814978).

This work has received funding from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme under grant agreement No 814978 (TUBE).

SISÄLLYSLUETTELO

1	Johdanto	1
2	Aerosolihiukkasten ominaisuuksia	3
2.1	Aerosolihiukkasten ominaisuuksia	3
2.2	Aerosolihiukkasten diffuusio	5
2.3	Diffuusion aiheuttamat hiukkashäviöt aerosolivirtauksissa	6
3	Diffuusio aerosolin kokoluokittelumenetelmänä	10
3.1	Kokoluokittelumenetelmän teoreettinen tausta	10
3.2	Tasogeometrinen kokoluokittelija	15
3.3	Hiukkashäviöiden mallinnus	21
3.4	Näytteensyötön häviöt	22
3.5	Luokitellun koon poistomekanismin häviöt	26
3.6	Laitteen kokonaishäviöt ja läpäisyfunktio	27
4	Kokeellinen validointi	30
4.1	Kokeellinen mittausjärjestely	30
4.2	Mittaustulokset ja vertailu malliin	32
5	Yhteenveto	36
	Lähteet	38

KUVALUETTELO

1	1D model of the classifying chamber adapted from Arffman et al. (2017) and a 3D rendering of the prototype device studied	iii
2	Typical transfer function of the device and the individual components of the model as a function of the particle diameter d_p . Sample flow 2 l/min, total flow 6 l/min.	iii
3.1	Paikallinen konsentraatio diffuusiokertoimen funktiona eri ajanhetkillä	11
3.2	Poikkileikkauskaaviokuva laitteen luokittelukammioista, mukaillen Arffman et al. (2017)	12
3.3	Luokittelun läpäisymallin reaaliset integroimisrajat	15
3.4	Työssä tutkitun laitteen 3D-mallista luotu hahmonnus	16
3.5	Virtauskammion läpäisy hiukkaskoon funktiona erilaisilla virtausarvoilla	17
3.6	Kaaviokuva erilaisista rei'itetyistä jakeluputkista. Mukaillen Senecal (1957).	18
3.7	Kaaviokuva raollisista näytteenjakeluputkista A ja B. Mukaillen Senecal (1957).	19
3.8	Poikkileikkauskuva erilaisista näytteensyöttömekanismeista	20
3.9	Poikkileikkauskuva luokitellun koon poistomekanismista reiän kohdalta	21
3.10	Jakeluputken kokonaisläpäisy hiukkaskoon funktiona eri näytevirtauksilla	23
3.11	Näytteensyöttömekanismien komponenttien läpäisy hiukkaskoon funktiona	24
3.12	Mallinnettu näytteensyötön kokonaisläpäisy	25
3.13	Poistomekanismin komponenttien läpäisy hiukkaskoon funktiona	26
3.14	Poistomekanismin läpäisy hiukkaskoon funktiona eri virtausarvoilla	27
3.15	Diffuusioluokittelijan kokonaisläpäisyfunktion läpäisy komponenteittain	28
3.16	Diffuusioluokittelijan kokonaisläpäisyfunktioita eri virtausarvoilla	29
4.1	Eri uunin lämpötiloilla generoituja hiukkaskokojakaumia	31
4.2	Kaaviokuva kokonaisläpäisyn mittausjärjestelystä	32
4.3	Tyypillisiä mitattuja ja mallinnettuja läpäisyjä.	33
4.4	Soviteparametrien arvot. Värikartta: sovitteiden R^2 -arvot.	35

TAULUKKOLUETTELO

3.1	Näytteensyöttömekanismien fyysiset mitat	19
4.1	Soviteparametrien merkitys mallinnettujen ja mitattujen tulosten vertailussa	34

LYHENTEET JA MERKINNÄT

A	Pinta-ala
B	Mekaaninen liikkuvuus
C_c	Cunninghamin liukukorjauskerroin
C	Hiukkaspitoisuus, konsentraatio
D	Diffuusiokerroin
F_d	Stokesin lain vastusvoima
Kn	Knudsenin luku
Q	Tilavuusvirtaus
Re_p	Hiukkasen Reynoldsin luku
Re	Reynoldsin luku
Stk	Stokesin luku
T	Lämpötila
η	Fluidin (kaasun) dynaaminen viskositeetti
λ	Kaasumolekyylin vapaa matka
ρ_g	Kaasun tiheys
d_p	Hiukkasen halkaisija
k_B	Boltzmannin vakio
t	Aika
u	Virtausnopeus
CPC	kondensatiohiukkaslaskuri (engl. Condensation Particle Counter)
DDA	differentiaalinen diffuusiokokoluokittelija (engl. Differential Diffusion Analyzer)
DMA	differentiaalinen liikkuvuusanalysointilaitteisto (engl. Differential Mobility Analyzer)
PSM	hiukkaskasvatin (engl. Particle Size Magnifier)
SMPS	skannaava liikkuvuuskokoluokittelija (engl. Scanning Mobility Particle Sizer)

1 JOHDANTO

Aerosoli määritellään kiinteiden tai nestemäisten hiukkasten ja niitä ympäröivän kaasun kokonaisuudeksi (Hinds 1999). Puhdasta kaasufaasia ilman hiukkasia ei luonnossa esiinny, joten aerosolit ja aerosolihiukkaset ovat hyvin arkipäiväinen ilmiö. Esimerkiksi hengittämämme huoneilma sisältää aina jonkin verran pienhiukkasia. Pienhiukkaset ovat tilavuuden ja massan suhteen tarkasteltuna hyvin pieni osa itse aerosolia, mutta niiden merkitys esimerkiksi terveydelle ja ilmastolle on suuri; huonon ilmanlaadun on arvioitu olevan globaalisti suurin ympäristöön liittyvä terveysriski (Shiraiwa et al. 2017). Haitallisista terveysvaikutuksista huolimatta aerosoleilla on myös hyödyllisiä sovelluksia, esimerkiksi hengitettävät inhalaatiolääkkeet hyödyntävät aerosoleja lääkeaineen kuljetuksessa elimistöön.

Erittäin pienillä, alle 10 nm hiukkasilla on merkittävä rooli uusien hiukkasten syntymekanismien tutkimuksessa (Arffman et al. 2017). Uusia vain muutamien nanometrien kokoisia hiukkasia luovaa nukleaatiota on havaittu tapahtuvan esimerkiksi ilmakehässä (Kulmala et al. 2004) ja liikenteessä heti dieselpakokaasun poistuessa ilmakehään (Rönkkö, Virtanen et al. 2007). Liikenteen onkin havaittu olevan merkittävä alle 3 nm hiukkasten lähde (Hietikko et al. 2018; Rönkkö, Kuuluvainen et al. 2017). Kasvaessaan höyryjen vaikutuksesta pienet hiukkaset toimivat myös pilvien tiivistymisytiminä, minkä takia niillä on merkittävä rooli ilmastotutkimuksessa (Kerminen et al. 2012).

Kyky mitata aerosolien ominaisuuksia tarkasti ja luotettavasti mahdollistaa laajemman aerosolitutkimuksen ja esimerkiksi hiukkaspäästöjen ilmastovaikutusten arvioinnin. Aerosolin sisältämien hiukkasten määrä ja koko ovatkin usein tärkeimpiä aerosolin ominaisuuksiin vaikuttavia tekijöitä. Aerosolihiukkaset ovat kooltaan pieniä, mutta hiukkasten halkaisija voi vaihdella nanometreistä mikrometreihin. Suuren kokovaihtelun lisäksi esimerkiksi luonnossa esiintyvien aerosolien hiukkaskokojakaumat ovat aina polydispersiivisiä, eli niiden sisältämät hiukkaset eivät ole vain yhtä tiettyä kokoa. Tällöin on mielekästä tutkia tietyn aerosolin hiukkaspitoisuutta koon funktiona, eli aerosolin hiukkaskokojakaumaa. Aerosolin kokojakauman mittaaminen vaatii menetelmän luokitella hiukkaset niiden koon mukaan, minkä jälkeen luokiteltujen hiukkasten pitoisuus voidaan mitata. Luokittelu ja pitoisuusmittaus toteutetaan usein erillisillä mittalaitteilla. Alle 10 nm hiukkasten luokittelu niiden koon perusteella on nykyisin käytetyin menetelmien avulla haastavaa. Viimeaikaisessa tutkimuksessa on tutkittu yhä pienempiä hiukkasia ja niihin liittyviä ilmiöitä (Chu et al. 2019; Dada et al. 2020). Tällaisen tutkimuksen mahdollistamiseksi tarvitaan menetelmä, jolla pieniä hiukkasia voidaan tehokkaasti luokitella.

Suurin osa nykyään käytetyistä luokittelumenetelmistä perustuu hiukkasten luokitteluun niiden sähköisen liikkuvuuden perusteella. Sähköinen liikkuvuusluokittelu vaatii hiukkasten olevan sähköisesti varattuja, mutta hiukkasten varaustehokkuus heikkenee kuitenkin merkittävästi hiukkaskoon pienentyessä. Alle 10 nm hiukkasilla on korkeintaan yhden alkeisvarauksen suuruinen, joko negatiivinen tai positiivinen varaus. Teoreettinen bipolaarinen, kummankin polariteetin yhteisvaraustehokkuus 10 nm hiukkasille on noin 10% sekä 3 nm hiukkasille noin 1%. (Flagan 2011) Sähköisillä luokittelumenetelmillä, kuten usein käytetyllä differentiaalisella liikkuvuusanalysointilaitteella (engl. Differential Mobility Analyzer, DMA) voidaan luokitella samanaikaisesti hiukkasia, joilla on vain tietyn polariteetin varaus, siis käytännössä korkeintaan 5% 10 nm hiukkasista ja 0.5% 1 nm hiukkasista. Tässä työssä tutkitun diffuusion perustuvan luokittelun tehokkuus on hiukkasen koosta tai varauksesta riippumaton. Diffuusion satunnaisesta luonteesta johtuen luokittelun teoreettinen maksimitehokkuus on noin 10%, mikä on huomattavasti korkeampi kuin sähköisten luokittelumenetelmien tehokkuus alle 10 nm hiukkasille.

Arffman et al. (2017) esittivät diffuusion perustuvan aerosolikokoluokittelijan, joka kykenee luokittelemaan hiukkaset niiden mekaanisen liikkuvuuden perusteella. Tällöin hiukkasen sähköisillä ominaisuuksilla, kuten varausluvulla, ei ole merkitystä luokittelutapahtuman kannalta. Diffuusion satunnaisesta luonteesta johtuen diffuusioluokittelijan teoreettinen maksimiläpäisy ilman hiukkahäviöitä on noin 10%, mutta luokittelun läpäisy ei riipu hiukkaskoosta samalla tavalla kuin varaustehokkuus. Arffman et al. esittämäänsä rakenteesseen perustuvan diffuusioluokittelijan kokonaisläpäisyyttä on kokeellisesti mitattu. Kokeellisesti mitatun hiukkasläpäisyn todettiin kuitenkin olevan huomattavasti pienempi kuin luokittelun teoreettinen maksimiläpäisy. Tämän työn tarkoituksena on selittää teoreettisten ja kokeellisten tulosten eroa mallintamalla laitteessa tapahtuvia hiukkahäviöitä. Hiukkahäviönä käsitetään muusta kuin luokittelusta johtuva laitteen läpäisytehokkuuden heikkeneminen, käytännössä tarkoittaen laitteen näytteensyöttö- ja poistomekanismien aiheuttamia häviöitä.

Tämän työn luvussa 2 esitetään työssä tutkitun diffuusioliikkeen ja siihen perustuvan hiukkaskokoluokittelun kannalta olennaisia aerosolien ominaisuuksia. Lisäksi luvussa 2 esitetään mallinnuksessa käytettyjä diffuusioliikkeen ratkaisuja. Luvussa 3 esitetään työssä käsitellyn laitteen fyysinen rakenne ja johdetaan luvun 2 teoriaa soveltava hiukkasten luokittelu- ja häviömalli. Luvun 3 mallia verrataan kokeellisiin mittaustuloksiin luvussa 4.

2 AEROSOLIHUUKKASTEN OMINAISUUKSIA

Tässä luvussa käsitellään työssä tutkitun kokoluokittelijan teoreettisen taustan kannalta olennaisia aerosolien ominaisuuksia sekä diffuusioliömiötä aerosolissa. Luvussa käsitellään hiukkasten diffuusiota aerosolissa yleisesti ja diffuusion aiheuttamia hiukkashäviöitä aerosolivirtauksissa.

2.1 Aerosolihiukkasten ominaisuuksia

Aerosoleja tutkittaessa suositaan hiukkasten luokittelua hiukkasen koosta riippuvan liikkuvuuden B perusteella. Mekaaninen liikkuvuus kuvaa hiukkasen tietyn nopeuden ja tämän nopeuden ylläpitämiseen vaaditun voiman suhdetta, yhdistäen aerosolihiukkasen ja sitä ympäröivän kaasun ominaisuuksia. (Hinds 1999)

Virtauksen Reynoldsin luku on dimensioton suhdeluku joka kuvaa virtaavan fluidin inertiaivoimien suhdetta viskooseihin voimiin. Pienillä Reynoldsin luvuilla viskoosit voimat ovat hallitseva komponentti ja virtaus on laminaarinen. Suurilla Reynoldsin luvuilla inertiaivoimat ovat huomattavasti viskooseja voimia suurempia ja virtaus on turbulenti. Reynoldsin luvun laskennassa käytetään myös virtausgeometriasta riippuvaa virtausta karakterisoivaa mitta, esimerkiksi poikkileikkaukseltaan ympyrän muotoiselle putkelle

$$Re = \frac{\rho_g u d}{\eta}, \quad (2.1)$$

missä ρ_g on virtaavan fluidin tiheys, u on fluidin virtausnopeus, d on karakteristisena mittana toimiva putken sisähalkaisija ja η on fluidin dynaaminen viskositeetti. Poikkileikkaukseltaan ympyrän muotoisessa putkessa tapahtuvan virtauksen Reynoldsin luvun ollessa $Re < 2000$ on virtaus laminaarista ja $Re > 4000$ on virtaus turbulenti. Näiden raja-arvojen välissä sijaitsee välialue, jossa virtaus voi olla laminaarinen tai turbulenti. Välialueella virtauksen laatu riippuu edeltävistä virtauskanavista: jos virtaus on laminaarinen, se myös pysyy laminaarisena, mutta pienikin epäideaalisuus putken pinnassa aiheuttaa virtaukseen pysyvää turbulenssia. Laminaarilla virtausalueella tällainen virtaukseen syntynyt turbulenssi kuitenkin tasoittuu ja virtaus pysyy laminaarina.

Myös aerosolihiukkaselle voidaan laskea Reynoldsin luku, Re_p , joka karakterisoi hiukkasen ohi kulkevan virtauksen laatua hiukkasen ympäristössä. Aerosolihiukkasen Reynoldsin luvun ollessa pieni ($Re_p < 1$) virtauksen siihen kohdistama kitkavoima on Stokesin lain mukainen. Tällöin vastusvoima F_d riippuu hiukkasen suhteellisesta nopeudesta flui-

diin nähden ja on muotoa

$$F_d = 3\pi\eta u d_p, \quad (2.2)$$

missä η on kaasun dynaaminen viskositeetti, u on hiukkasen suhteellinen nopeus kaasuvirtaukseen nähden ja d_p on hiukkasen halkaisija. Pienillä hiukkasen Reynoldsin luvuilla ($Re_p < 1$) hiukkasen mekaaninen liikkuvuus voidaan kirjoittaa muodossa

$$B = \frac{V}{F_d} = \frac{1}{3\pi\eta d_p}. \quad (2.3)$$

Yhtälön 2.3 on kuitenkin kokeellisesti havaittu pätevän vain halkaisijaltaan noin mikrometriä suuremmille hiukkasille. Stokesin laki olettaa kaasun suhteellisen nopeuden hiukkasen pinnalla olevan nolla. Tämän on empiirisesti havaittu olevan epätosi pienille hiukkasille, joiden halkaisija on kaasumolekyylien vapaan matkan kokoluokkaa. (Hinds 1999)

Myös Knudsenin luku Kn kertoo kaasun käyttäytymisestä hiukkaseen nähden. Suurella Knudsenin luvulla ($Kn \gg 1$) kaasu käyttäytyy hiukkasen suhteen harvempana, jolloin hiukkanen on samaa kokoluokkaa kaasumolekyylien kanssa ja sen sanotaan olevan vapaalla molekyylialueella. Pienellä Knudsenin luvulla ($Kn \ll 1$) hiukkanen on jatkuvasti törmäyksissä kaasumolekyylien kanssa ja kaasu käyttäytyy hiukkaseen nähden tiheämpänä. Knudsenin luku voidaan määritellä kaasun vapaan matkan λ ja hiukkasen säteen suhteena seuraavasti (Kulkarni, Baron ja Willeke 2011)

$$Kn = \frac{\lambda}{r_p} = \frac{2\lambda}{d_p}. \quad (2.4)$$

Ideaalikaasun molekyylien keskimääräinen vapaa matka normaaliolosuhteissa on nanometrien suuruusluokkaa, joten kaavan 2.3 liikkuvuus ei sellaisenaan kuvaa todellista tilannetta nanometrien kokoisille hiukkasille.

Soveltamalla Cunninghamin (1910) esittämää korjauskerrointa Stokesin lain vastusvoima voidaan esittää muodossa

$$F_d = \frac{3\pi\eta V d_p}{C_c}, \quad (2.5)$$

missä C_c on Cunninghamin liukukorjauskerroin. Liukukorjauskerroin esitetään yleensä empiirisen sovituksen yhtälönä, joka on muotoa

$$C_c = 1 + Kn \left(\alpha + \beta e^{-\frac{\gamma}{Kn}} \right), \quad (2.6)$$

missä α , β ja γ ovat sovituksen parametreja ja Kn on Knudsenin luku. Allen ja Raabe (1985) ovat empiirisiin tuloksiin perustuen esittäneet soviteparametreille arvoja $\alpha = 1.142(\pm 0.0024)$, $\beta = 0.558(\pm 0.0024)$ ja $\gamma = 0.999(\pm 0.0212)$.

Cunninghamin liukukorjauskerroin huomioiden hiukkasen liikkuvuus on muotoa

$$B = \frac{V}{F_d} = \frac{C_c}{3\pi\eta d_p}. \quad (2.7)$$

Yhtälön 2.7 liukukorjauskertoimella korjattu liikkuvuus on alle 20 nm hiukkasilla jopa kymmeniä kertoja suurempi kuin yhtälön 2.3 korjaamaton arvo.

2.2 Aerosolihiukkasten diffuusio

Ensimmäisen havainnon hiukkasten satunnaisliikkeestä kaasussa teki Bodaszewski vuonna 1881 (Knutson 1999; Rideal 1930). 1905 Einstein esitti teoreettisen selityksen tälle Brownin liikkeenä tunnetulle hiukkasten satunnaisliikkeelle. Einsteinin esittämän teorian avulla voidaan selittää aerosolihiukkasten diffuusio ja erityisesti hiukkasen diffuusiokerroimen riippuvuus sen liikkuvuudesta, joka taas riippuu hiukkasen koosta. 1910-luvulla Millikan, Fletcher ja Perrin tekivät Einsteinin teoriaa validoivia ja soveltavia kokeita (Knutson 1999). Hiukkasten diffuusiota kaasussa on käytetty aerosolien tutkimiseen Millikanin ja Fletcherin kokeista lähtien, mutta ensimmäisen diffuusion perustuvan luokittelumenetelmän kaasumaisille ioneille esitti Townsend jo vuonna 1900. 1935 Nolan ja Guerrinni sovelsivat samaa menetelmää aerosolihiukkasten kokomittauksiin. (Knutson 1999)

Einsteinin esittämän hiukkasen diffuusiokerroimen D yleinen muoto on

$$D = Bk_B T, \quad (2.8)$$

missä B on hiukkasen liikkuvuus, k_B on Boltzmannin vakio ja T on lämpötila. Yhdistämällä kaavassa 2.7 esitelty hiukkasen liikkuvuus diffuusiokerroimen yleiseen muotoon 2.8, voidaan aerosolihiukkasen diffuusiokerroin D esittää muodossa (Hinds 1999)

$$D = \frac{k_B T C_c}{3\pi C_c d_p}. \quad (2.9)$$

Yhtälöstä 2.9 voidaan huomata hiukkasen diffuusiokerroimen olevan kääntäen verrannollinen hiukkasen halkaisijaan siten, että suurilla hiukkasilla diffuusion aiheuttama liike on hitaampaa. Tätä ominaisuutta voidaan käyttää hyväksi aerosolien kokoluokittelussa.

Aerosolihiukkaset tarttuvat voimakkaasti pintoihin joihin ne törmäävät. Tämä on eräs karakteristinen ominaisuus, joka erottaa aerosolihiukkaset kaasumolekyyleistä ja muutamia millimetriä suuremmista kappaleista. (Hinds 1999) Diffuusion perustuvissa kokoluokittelumenetelmissä hiukkasten adheesio pintaan oletetaan usein täydelliseksi, eli kaikkien pintaan törmäävien hiukkasten oletetaan myös tarttuvan siihen (Knutson 1999). Hiukkaset voivat kuitenkin irrota pinnasta esimerkiksi ulkoisten voimien tai voimakkaan kaasuvirtauksen takia. Ilmiötä kutsutaan resuspensioksi. Adheesiovoimien suuruus riippuu hiukkasen ja pinnan materiaalista ja pintojen karkeuksista: esimerkiksi törmäykses-

tä johtuvan hiukkasen muodonmuutoksen seurauksena adheesiovoimat pehmeille metalleille voivat suuruudeltaan jopa viisitoistakertaistua ja muoveille jopa satakertaistua. Hiukkasten kerrostuminen pinnalle voi edesauttaa niiden resuspensiota. Virtauksen aiheuttama hiukkasten resuspensio johtuu turbulentin pyörteen kyvystä läpäistä virtauksen rajakerros ja täten irrottaa hiukkasia pinnasta. Varsinkin virtauksen aiheuttama resuspensio on usein voimakkaampaa mikrometrien kokoisilla hiukkasilla, joten ilmiö sivuutetaan tässä työssä merkityksettömänä nanometrien kokoisille hiukkasille laminaarisessa virtauksessa. (Hinds 1999)

Suurin osa diffuusion perustuvista aerosolin kokoluokittelulaitteista perustuu kennora-kenteeseen, jossa aerosolivirtaus johdetaan useaan diffuusiokennoon. Tällaisella rakenteella saavutetaan virtaukseen nähden suuri pinta-ala hiukkasten depositiolle. Rakennetta kutsutaan kirjallisuudessa diffuusiopatteriksi (engl. *diffusion battery*). Diffuusiopatterin toimintaperiaate on yksinkertainen: pienet hiukkaset diffundoituvat nopeammin virtauskanavan seinämään ja törmätessään tarttuvat siihen. Diffuusion satunnaisesta luonteesta johtuen myös pienet hiukkaset voivat läpäistä diffuusiopatterin, mutta läpäisytodennäköisyys laskee huomattavasti hiukkaskoon pienenentyessä. Diffuusiopatterille on kuitenkin johdettavissa selkeä diffuusiokertoimen raja-arvo, jolla 50% hiukkasista läpäisee laitteiston.

Jos useita edellä esitettyjä diffuusiopattereita käytetään samanaikaisesti, voidaan menetelmää käyttää aerosolin kumulatiivisen kokojakauman mittaamiseen. Kokojakauman tarkka mittaus vaatii kuitenkin aerosolin pysyvän vakaana koko mittaussekvenssin ajan. Kumulatiivisen luonteen takia tällaisella mittauksella ei voida saada tietoa tietystä kokovälistä, vaan differentiaalinen tieto täytyy aina johtaa kumulatiivisen mittauksen kautta (Arffman et al. 2017). Eräs diffuusiopatteri-rakenteen suurimmista heikkouksista on sen heikko kokoresoluutio, minkä takia kumulatiivisen mittausdatan käsittelyyn tarvitaan yleensä matemaattisia inversiomenetelmiä (Knutson 1999). Tässä työssä tutkittu luokittelulaite ja -menetelmä mahdollistavat differentiaalisen diffuusioluokittelun, eli menetelmällä voidaan tutkia myös tiettyä hiukkasten kokoväliä.

2.3 Diffuusion aiheuttamat hiukcashäviöt aerosolivirtauksissa

Pienillä hiukkasilla diffuusion satunnaisliike aerosolivirtauksessa voi olla hiukkasen liikkeen kannalta dominoivin komponentti. Esimerkiksi putkessa virtaavassa aerosolissa tämä johtaa tilanteeseen, jossa pienet hiukkaset diffundoituvat nopeasti putken seinämille ja putken läpäisy laskee pienillä hiukkaskoilla. Diffuusiosta johtuvat häviöt tuleekin ottaa huomioon aerosolimittausta toteuttaessa, erityisesti tutkittaessa nanometri-kokoluokan hiukkasia. Tässä luvussa esitetään analyttisiä ratkaisuja hiukkasten depositiolle erilaisissa geometrioissa. Näitä ratkaisuja soveltamalla voidaan erilaisista virtauskanavista koostuvalle systeemille johtaa kokonaisläpäisyfunktio, joka kertoo kuinka suuri osa tietyn kokoisista hiukkasista läpäisee systeemin.

Gormley ja Kennedy (1949) esittivät analyttisen ratkaisun diffuusiolle poikkileikkauksel-

taan ympyrän muotoisessa putkessa. Olkoon a putken säde, Q tilavuusvirtaus putkessa ja V kaasun nopeus putkessa missä tahansa pisteessä etäisyydellä r putken virtausuunnan keskiakselista. Tällöin

$$V = \frac{2Q}{\pi a^4}(a^3 - r^2). \quad (2.10)$$

Valitaan karteesisen koordinaatiston akselit x , y ja z siten, että akseleiden x ja y leikkauspiste sijaitsee virtaussuuntaan nähden kohtisuorassa poikkileikkauksessa keskellä putkea ja akseli z on yhdensuuntainen virtaussuuntaan nähden. Jos u , v ja w ovat hiukkasen nopeuden akseleiden x , y ja z suuntaiset komponentit ja C on hiukkasten konsentraatio, liikeyhtälöt hiukkaselle ovat

$$D \frac{\partial C}{\partial x} = -Cu, \quad D \frac{\partial C}{\partial y} = -Cv \quad \text{ja} \quad D \frac{\partial C}{\partial z} = -C(w - V), \quad (2.11)$$

missä D on hiukkasen diffuusiokerroin. Virtauksen jatkuvuusyhtälö hiukkasvirtaukselle on

$$\frac{\partial}{\partial x}(Cu) + \frac{\partial}{\partial y}(Cv) + \frac{\partial}{\partial z}(Cw) = 0 \quad (2.12)$$

Yhtälöistä 2.11 ja 2.12 saadaan

$$\nabla \cdot C - \frac{1}{D} \frac{\partial}{\partial z}(CV) = 0, \quad (2.13)$$

joka on sylinterikoordinaatistossa ilmaistuna

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 C}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{1}{D} \frac{\partial}{\partial z}(CV) = 0. \quad (2.14)$$

Ratkaisussaan Gormley ja Kennedy sivuuttavat yhtälön 2.14 termin $\frac{\partial^2 C}{\partial z^2}$ merkityksettömänä, sillä se kuvaa konsentraatiogradientin aiheuttamaa liikettä virtaussuunnassa. Symmetrian takia poikkileikkaukseltaan ympyrän muotoiselle putkelle sylinterikoordinaatistossa pätee $\frac{\partial C}{\partial \theta} = 0$. Huomioiden nämä toimenpiteet yhtälö 2.14 saa muodon

$$\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} - \kappa(a^2 - r^2) \frac{\partial C}{\partial z} = 0, \quad (2.15)$$

missä $\kappa = \frac{2Q}{\pi a^4 D}$.

Ratkaisun alkuehtona oletetaan putken lähtökonsentraation olevan vakio. Lisäksi ratkaisun reunaehtona putken seinään törmäävien hiukkasten oletetaan tarttuvan siihen. Ratkaisun ehdot ovat matemaattisesti muotoiltuna

$$\begin{cases} C = 0, & \text{kun } r = a, \\ C = C_0, & \text{kun } z = 0 \end{cases} \quad (2.16)$$

Tällöin hiukkasten lukumäärän suhde etäisyydellä z alkutilanteeseen on

$$C/C_0 = \frac{4}{a^4 C_0} \int_0^a Cr(a^2 - r^2) dr, \quad (2.17)$$

missä C on yhtälön 2.15 ratkaisu, joka huomioi aiemmin esitellyt alku- ja reunaehdot. Gormley ja Kennedy esittävät sarjakehitelmäratkaisun

$$C/C_0 = 0.8191e^{-7.314h} + 0.0975e^{-44.6h} + 0.0325e^{-114h} + \dots, \quad (2.18)$$

missä h on dimensioton parametri:

$$h = \frac{z}{\kappa a^4} = \frac{\pi D z}{2Q}. \quad (2.19)$$

Gormley ja Kennedy esittävät myös ratkaisun asymptoottisen kehittämän tilanteelle, jossa $h \approx 0$. Tällöin

$$C/C_0 = 1 - 4.07h^{\frac{2}{3}} + 2.4h + 0.446h^{\frac{4}{3}} + \dots \quad (2.20)$$

Kirjallisuudessa nämä ratkaisut sekä niissä käytetty dimensioton parametri h esitetään useissa erilaisissa muodoissa. Eräs alkuperäisestä ratkaisusta (Gormley ja Kennedy 1949) johdettu tarkemmilla numeerisilla arvoilla ilmoitettu versio on

$$C/C_0 = 0.8191e^{-3.657\beta} + 0.0975e^{-22.3\beta} + 0.0325e^{-57\beta}, \quad \text{kun } \beta \geq 0.0312 \text{ ja } (2.21a)$$

$$C/C_0 = 1 - 2.56\beta^{\frac{2}{3}} + 1.2\beta + 0.177\beta^{\frac{4}{3}}, \quad \text{kun } \beta < 0.0312, \quad (2.21b)$$

missä C/C_0 on aerosolihiukkasten suhteellinen läpäisy ja β on aiemmin esiteltyä parametria h vastaava dimensioton suure:

$$\beta = \frac{\pi D z}{Q}, \quad (2.22)$$

missä D on hiukkasen diffuusiovakio, z on putken pituus ja Q aerosolin tilavuusvirtaus putkessa (Brockmann 2011). Gormleyn ja Kennedyn esittämän laminaarin läpäisymallin luotettavuus on osoitettu kokeellisesti 2 nm hiukkaskoon alarajalle asti lyhyillä ($z < 1,0$ m) näyteputkilla (Alonso et al. 1997). Pitkillä ($z > 1,0$ m) näytelinjoilla alle 20 nm hiukkasten häviöiden on kokeellisesti havaittu olevan suuremmat kuin Gormleyn ja Kennedyn teoreettiset arvot (Kumar et al. 2008).

Yksinkertaisille geometrioille voidaan johtaa vastaavat analyttiset ratkaisut. Cheng 2011 esittää kapealle suorakulmaiselle kanavalle Tanin ja Thomaksen (1972) analyttisen sarjakehitelmän

$$P = 0.91e^{-2.83\beta} + 0.053e^{-32.15\beta} + 0.015e^{-93.5\beta} + 0.007e^{-187\beta}, \quad \text{kun } \beta > 0.05 \quad (2.23a)$$

$$P = 1 - 1.526\beta^{\frac{2}{3}} + 0.15\beta + 0.0342\beta^{\frac{4}{3}}, \quad \text{kun } \beta \leq 0.05, \quad (2.23b)$$

missä β on jälleen dimensioton diffuusiovakiosta D ja tilanteen geometriasta riippuva

suure:

$$\beta = \frac{8DLW}{3QH}, \quad (2.24)$$

missä L on kanavan pituus, W kanavan leveys, H kanavan syvyys ja Q aerosolin tilavuusvirtaus kanavassa. Yhtälön 2.23 johdossa on oletettu kanavan leveyden W olevan huomattavasti suurempi kuin sen syvyyden H . (Cheng 2011)

Tässä luvussa esiteltyjä analyyttisiä ratkaisuja soveltamalla voidaan yksinkertaisia geometrioita noudattaville aerosolin virtauskanaville johtaa diffuusiosta johtuvat häviöt huomioiva läpäisyfunktio.

3 DIFFUUSIO AEROSOLIN KOKOLUOKITTELUMENETELMÄNÄ

Luvussa 2.3 esitellyn häviöefektin lisäksi diffuusiota voidaan hyödyntää aerosolien kokoluokittelussa. Tässä luvussa käsitellään luvun 2.2 yleistä diffuusioteoriaa soveltavaa aerosoliluokittelulaitetta. Luvussa käsitelty differentiaalinen diffuusiokokoluokittelija (engl. Differential Diffusion Analyzer) (DDA) perustuu hiukkasen diffuusiokertoimen ja liikkuvuuden verrannollisuuteen.

3.1 Kokoluokittelumenetelmän teoreettinen tausta

Tarkastellaan nyt diffuusiota yksiulotteisissa systeemeissä, jossa kaikilla hiukkasilla on sama diffuusiokerroin D . Ajanhetkellä $t = 0$ hiukkaspitoisuus paikassa $x = 0$ on $C(x, t) = C(0, 0) = C_0$ ja muualla kaasussa $C(x, 0) = 0, x \neq 0$. Ajan kuluessa hiukkaset diffundoituvat Brownin liikkeen seurauksena. Tällaista systeemiä kuvaa Fickin toisena diffuusiolakina tai yleisesti diffuusioyhtälönä tunnettu differentiaaliyhtälösystemi, joka alkuehtoineen voidaan esittää

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}, & x > 0, t > 0 \\ C(0, 0) = C_0. \end{cases} \quad (3.1)$$

Systeemin ratkaisuna saadaan konsentraatio

$$C(x, t) = \frac{C_0}{\sqrt{4\pi Dt}} \exp\left(\frac{-x^2}{4Dt}\right). \quad (3.2)$$

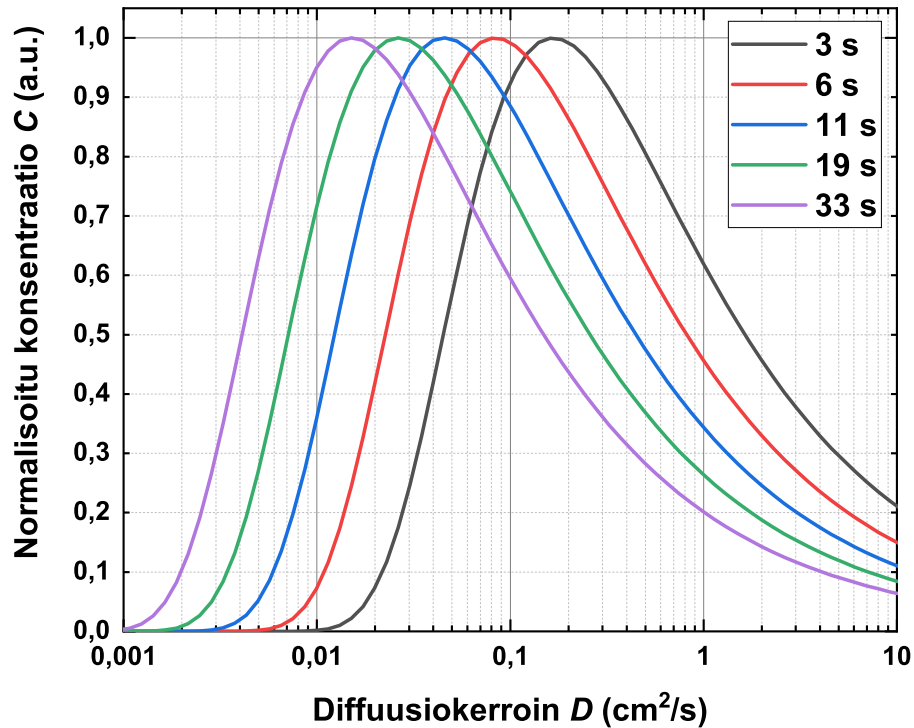
Tietystä paikasta x tietyllä ajanhetkellä t tällä ratkaisulla on aina maksimikohta diffuusiokertoimen D funktiona. Tämä maksimi saavutetaan aina diffuusiokertoimen arvolla

$$D = \frac{x^2}{2t}. \quad (3.3)$$

Maksimimolekyylinen olemassaolo voidaan hyödyntää kokoluokittelulaitteistossa, sillä hiukkasen halkaisija d_p on kääntäen verrannollinen diffuusiokertoimeen D nähden kaavan 2.9 mukaisesti. (Arffman et al. 2017)

Kuvassa 3.1 on esitetty normalisoidun konsentraatiofunktion riippuvuus hiukkasen dif-

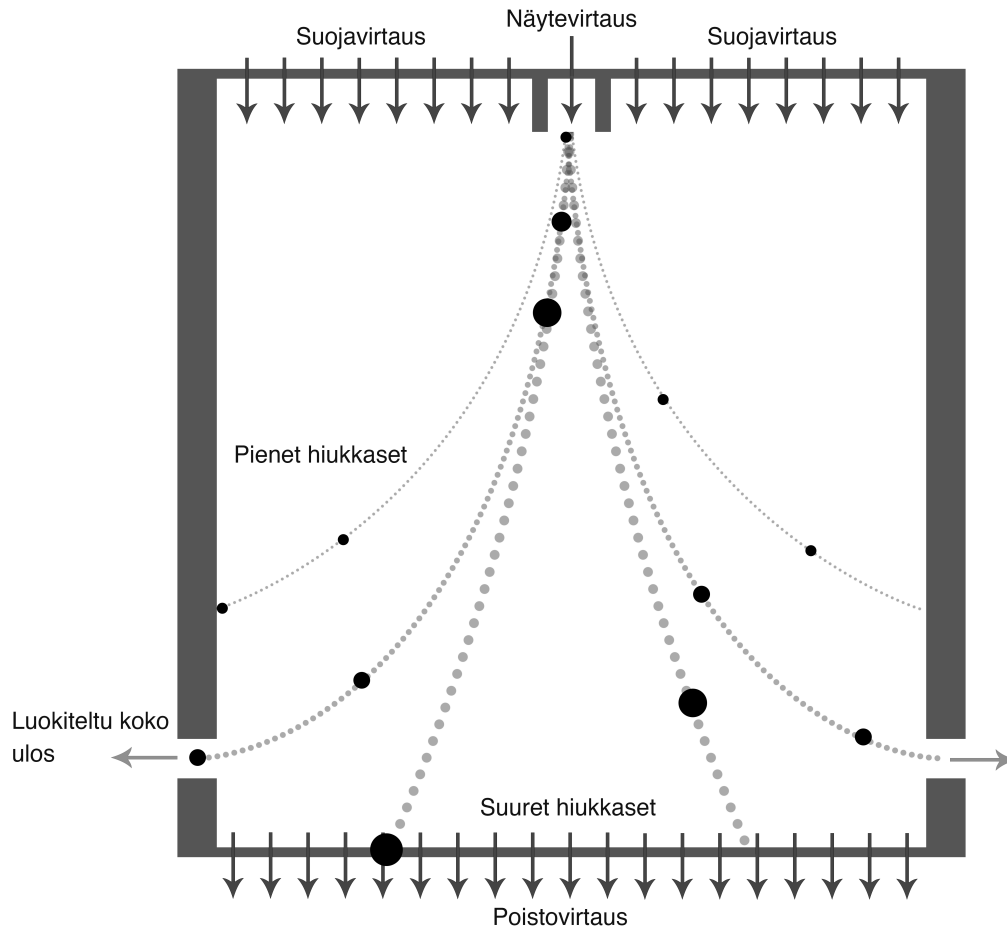
fuusiokertoimesta paikassa $x = 1$ cm eri ajanhetkilä.



Kuva 3.1. Paikallinen konsentraatio diffuusiokertoimen funktiona eri ajanhetkillä

Kuvasta 3.1 havaitaan, että ajan kuluessa maksimikonsentraatio samassa paikassa ($x = 1$ cm) saavutetaan pienemmillä diffuusiokertoimen arvoilla. Hiukkasen koko on yhtälön 2.9 mukaisesti kääntäen verrannollinen sen diffuusiokertoimeen, joten ajan kuluessa suurimman konsentraation hiukkaskoko kasvaa, jos paikka pysyy vakiona.

Menetelmää hyödyntävä planaargeometrinen luokittelulaite koostuu erillisestä näytteen-syöttömekanismista, luokittelukammioista ja luokitellun hiukkaskoon sisältävän aerosolin poistomekanismista. Luokiteltava näyte syötetään luokittelukammioon syvyysuunnassa symmetrisesti samalla virtausnopeudella kuin sitä ympäröivä suojailmavirtaus, jolloin kammion kokonaisvirtaus pysyy laminaarisena. Kuvassa 3.2 on esitetty kaaviokuva laitteen luokittelukammioista ja hiukkasten liikkeestä kammiossa.



Kuva 3.2. Poikkileikkauskaaviokuva laitteen luokittelukammioista, mukailten Arffman et al. (2017)

Laitteella luokiteltavien hiukkasten relaksaatioaika on niin pieni, että niiden voidaan olettaa liikkuvan täydellisesti kaasuvirtauksen mukana kun näytevirtaus yhdistyy suojailemavirtaukseen. Luokiteltavan näytteen virtausnopeuden ollessa sama kuin suojailemavirtauksen, hiukkasten keskimääräinen suhteellinen nopeus kaasuvirtaukseen nähden on nolla, eli hiukkanen liikkuu kaasun mukana virtaussuunnassa. Näyte syötetään luokittelukammioon koko kammion leveydeltä samalla konsentraatiolla, jolloin diffuusioluokittelu tapahtuu vain yhdessä ulottuvuudessa, kammion syvyys suunnassa. Pienet hiukkaset, joiden diffuusiokerroin on suuri, liikkuvat nopeammin luokittelukammion reunalle. Vastaavasti suuret hiukkaset, joiden diffuusiokerroin on pieni, liikkuvat hitaasti ja päätyvät poistovirtauksen mukana ulos luokittelukammioista. Hiukkanen voi saavuttaa luokittelukammion seinässä sijaitsevan poistoaukon vain tietyllä diffuusiokertoimen arvolla.

Aerosolin viipymäaika kammiossa määrittää luokiteltavan hiukkaskoon. Viipymäaikaan vaikuttaa kammiossa tapahtuvan virtauksen nopeus, joka taas riippuu aerosolin kokonaistilavuusvirtauksesta sekä kammion tilavuudesta. Nanometrien kokoisille hiukkasille diffuusiokerroin D saa tyypillisesti arvoja väliltä $10^{-5} - 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{s}$. Luokittelukammion tilavuuden ollessa litrojen kokoluokkaa saavutetaan kaavan 3.3 mukainen konsentraatiomaksimi nanometrien hiukkaskoille kokonaisvirtauksella, joka on muutamia litroja minuuti-

tissa.

Mallinnetaan kammiossa tapahtuvaa diffuusioluokittelua laskemalla luokittelukammion läpäisy hiukkaskoon funktiona. Merkitään luokittelukammion leveyttä W , pituutta kaasun virtaussuunnassa L ja syvyyttä, jonka suunnassa diffuusio tapahtuu Z . Merkitään näytevirtausta $Q_{näyte}$ ja suojailmavirtausta Q_{suoja} , kokonaisvirtauksen ollessa $Q = Q_{näyte} + Q_{suoja}$. Näyte syötetään kammioon sen reunassa olevasta raosta, syvyysuunnassa keskeltä ja leveysuunnassa koko matkalta W samalla konsentraatiolla C . Merkitään raon leveyttä Z_{rako} . Virtausnopeus u voidaan laskea tilavuusvirtauksesta Q ja virtauspinta-alasta A :

$$u = \frac{Q}{A}. \quad (3.4)$$

Näytevirtauksen virtausnopeuden $u_{näyte}$ tulee olla sama kuin suojailmavirtauksen nopeuden u_{suoja} , mihin näytevirtauksen on tarkoitus liittyä näytteensyötön jälkeen. Näytteensyötön jälkeen yhdistynyt kokonaisvirtaus Q virtaa edelleen samalla virtausnopeudella u . Tämä antaa ehdon näytteensyötössä käytetyn raon leveydelle: kokonaisvirtauksen nopeutta vastaan kohtisuorassa oleva poikkipinta-ala on $A = WZ$. Vastaavasti näytteensyötön poikkipinta-ala on $A_{näyte} = WZ_{rako}$.

$$u_{näyte} = u \Rightarrow \frac{Q_{näyte}}{A_{näyte}} = \frac{Q}{A} \Rightarrow \frac{Q_{näyte}}{Q} = \frac{A_{näyte}}{A} \Rightarrow \frac{Q_{näyte}}{Q} = \frac{Z_{rako}}{Z} \quad (3.5)$$

Näytteensyötön raon aukeaman suhde koko virtauskammion syvyyteen täytyy olla yhtä suuri kuin näytetilavuusvirtauksen suhde kokonaistilavuusvirtaukseen. On huomioitava, että lasketut virtausnopeudet ovat virtauksen keskimääräisiä nopeuksia, eikä edellä tehdyissä oletuksissa ole huomioitu kanavan todellista nopeusprofiilia. Nopeusprofiilin merkitys tulee huomioida erikseen, sillä virtausnopeus on syvyysuunnassa suurin kammion keskellä, johon myös näyte syötetään.

Luokiteltu hiukkaskoko poistetaan luokittelukammion seinissä symmetrisesti sijaitsevista näytteenpoistoraoista. Systemi on tasapainossa kun näytteenpoistoraoista poistetaan yhtä suuri virtaus kuin näyteensyöttöraosta kammioon syötetään ja kammion poistovirtaus on yhtä suuri kuin kammioon syötetty suojavirtaus. Läpäisyfunktio voidaan laskea luokitellun aerosolin hiukkaspitoisuuden ja alkuperäisen, hetkellä $t = 0$, näytteensyötössä vallinneen hiukkaspitoisuuden suhteena kullekin hiukkaskoolle.

Hiukkaspitoisuus voidaan laskea aiemmin esitellyn diffuusioyhtälön 3.1 avulla käyttäen realistisia reunaehtoja differentiaaliyhtälösystemille. Yhtälö reunaehtoineen on nyt muo-

toa

$$\begin{cases} \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}, & \text{kun } x > 0, t > 0 \\ C(x, 0) = C_0, & \text{kun } -c < x < c \\ C(a, t) = 0 \\ C(-a, t) = 0 \end{cases} \quad (3.6)$$

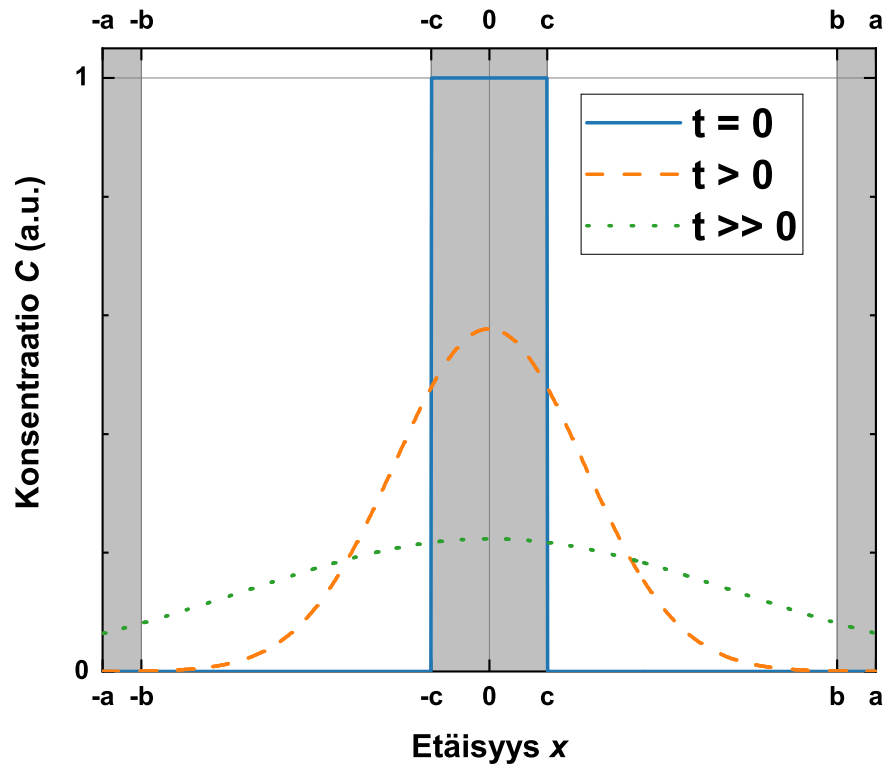
missä a kuvaa täydellisenä hiukkasnieluna toimivaa virtauskammion seinää ja c näytevirtauksen etäisyyttä virtauskammion keskiakselilta syvyys suunnassa. Jos huomioidaan systeemin symmetria syvyys suunnassa, voidaan systeemin läpäisy tietyllä hiukkaskoolla laskea seuraavilla integrointirajoilla

$$P = 2 \cdot \frac{\int_b^a C(x, t_{res}) dx}{\int_0^a C(x, 0) dx}. \quad (3.7)$$

Laskemalla läpäisy eri hiukkaskoilla saadaan lopullinen hiukkaskoosta riippuva läpäisyfunktio muotoon

$$k(d_p) = 2 \cdot \frac{\int_b^a C(x, t_{res}) dx}{\int_0^a C(x, 0) dx}. \quad (3.8)$$

Kuvassa 3.3 on esitetty graafisesti läpäisyfunktion mallintamiseen käytetyn luokittelumallin integroimisrajat.



Kuva 3.3. Luokittelun läpäisymallin reaaliset integroimisrajat

Integroimisrajat ovat nyt

$$a = \frac{Z}{2}, \quad (3.9a)$$

$$c = \frac{Z_{rako}}{2} = \frac{Z}{2} \frac{Q_{näyte}}{Q}, \quad (3.9b)$$

$$b = a - \frac{c}{2} = \frac{Z}{2} \left(2 - \frac{Q_{näyte}}{Q} \right). \quad (3.9c)$$

Differentiaaliyhtälö voidaan ratkaista numeerisesti, jolloin numeerisena ratkaisuna saadaan differentiaaliyhtälön toteuttava luokittelun läpäisyfunktio.

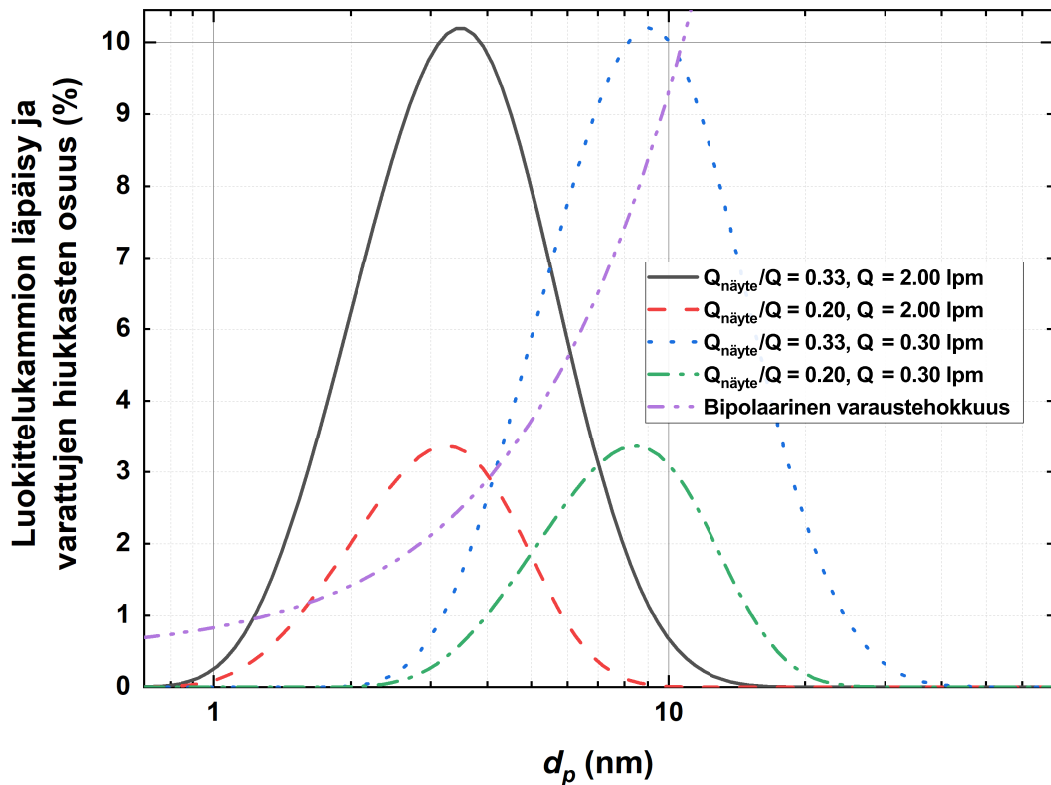
3.2 Tasogeometrinen kokoluokittelija

Tässä työssä tutkittu, aiemmin luvussa 3 esiteltyyn luokittelumenetelmään perustuva laitteisto koostuu poikkileikkaukseltaan suorakaiteen muotoisesta tasogeometrisesta virtauskammioista. Luokiteltava aerosoli johdetaan virtauskammioon erillisen näytteensyöttömekanismin avulla ja luokiteltu poisto poistetaan kammion reunassa sijaitsevien poistorakojen kautta. Kuvassa 3.4 on esitetty tässä työssä tutkitun laitteen 3D-malli.



Kuva 3.4. Työssä tutkitun laitteen 3D-mallista luotu hahmonnus

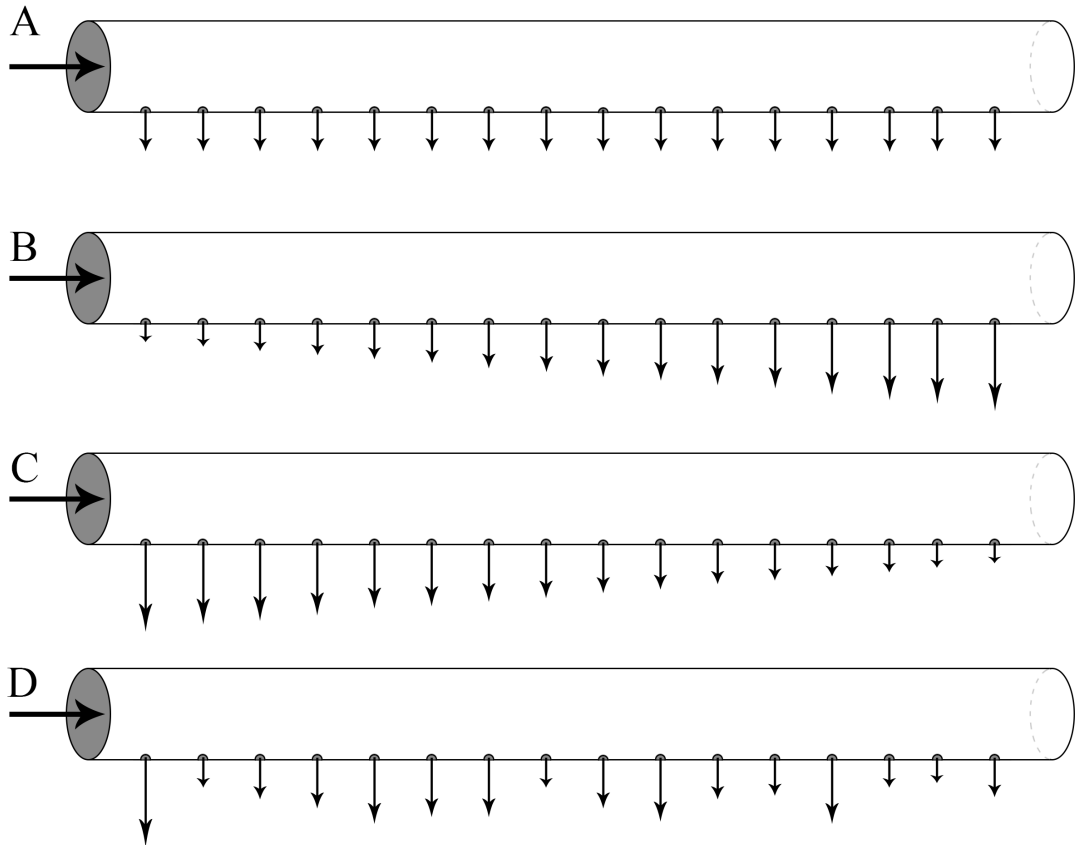
Suojailmavirtaus syötetään kammioon kuvassa 3.4 näkyvästä ylimmästä pituusakseliinsa nähden kohtisuoraan rei'itetystä putkesta tasaisesti koko kammion leveydeltä. Poistovirtaus on vastaavasti toteutettu alimmasta putkesta. Näyte syötetään kammioon toiseksi ylimmästä putkesta ja luokiteltu koko poistetaan kammion sivuilla olevien rakojen kautta poistokanavaan, josta se voidaan edelleen johtaa ulos laitteesta. Kuvan 3.4 toiseksi alin putkipari on liitetty tähän poistokanavaan. Suojailmavirtaus voidaan toteuttaa kiertovirtauksena ylimmän ja alimman putken välillä, jos kaasusta poistetaan mahdolliset poistovirtaukseen päätyneet hiukkaset suodattamalla ilma huolellisesti. Suojavirtausta voidaan lisäksi laminarisoida erilaisilla laminarisointielementeillä ennen näytevirtauksen yhdistymistä siihen. Tutkitun laitteen virtauskammion kokonaismitat ovat 20 mm · 160 mm · 510 mm. Luokittelu tapahtuu kuitenkin vain näytteensyötön ja luokitellun koon poistorakojen välissä. Tämän alueen pituus virtaussuunnassa on 315 mm, jolloin laitteen luokittelutilavuudeksi saadaan 20 mm · 160 mm · 315 mm \approx 1,0 L. Kuvassa 3.5 on esitetty virtauskammion mallinnettu läpäisy hiukkaskoon funktiona erilaisilla virtausarvoilla.



Kuva 3.5. Virtauskammion läpäisy hiukkaskoon funktiona erilaisilla virtausarvoilla

Kuvasta 3.5 voidaan havaita luokittelun teoreettisen maksimiläpäisyn olevan aina saman suuruinen samalla näytevirtauksen suhteella kokonaisvirtaukseen nähden. Suuremmalla virtaussuhteella luokittelun resoluutio heikkenee, mutta kokonaisläpäisy paranee. Suuremmalla kokonaisvirtauksella hiukkasten viipymäaika kammiossa lyhenee, joten luokitteluhuippu siirtyy kohti suurempia diffuusiokertoimia eli pienempiä hiukkaskokoja. Suurilla virtaussuhteilla laitteen läpäisyfunktio alkaa lähestyä tavallisen diffuusiopatterin läpäisyfunktia.

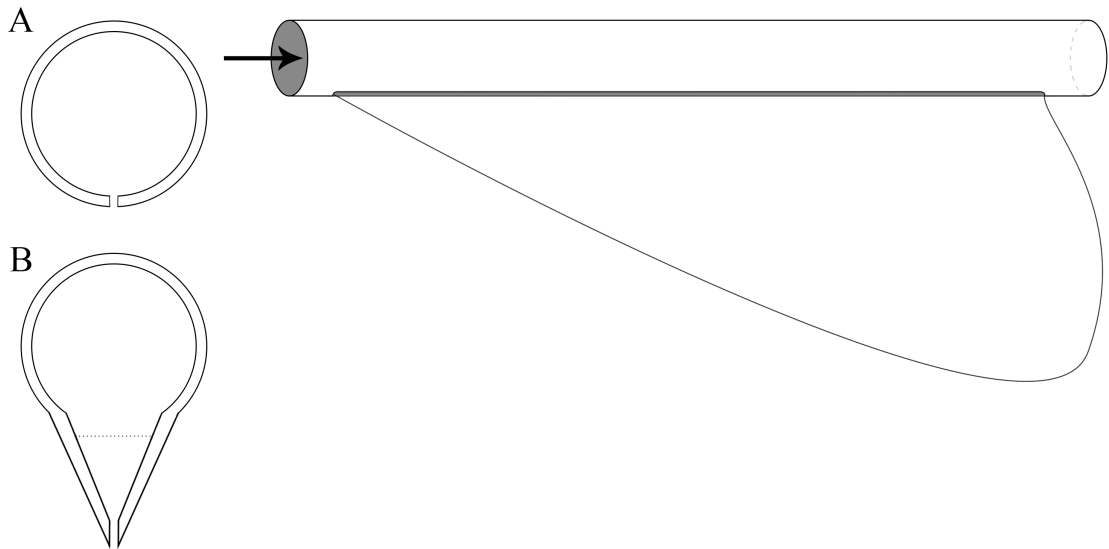
Luokiteltava aerosolinäyte tulee syöttää virtauskammioon laminaarisesti samalla virtausnopeudella kuin sitä ympäröivä suojailmavirtaus ohittaa näytteensyötön. Näytteensyötön täytyy tapahtua tasaisesti koko virtauskammion leveydeltä w . Tasaisen virtausjakauman aikaansaamiseksi näytteensyöttö täytyy toteuttaa esimerkiksi rei'itetyn jakeluputken avulla. Putki on pituudeltaan virtauskammion leveyden w mittainen ja se sisältää useita pituusakseliinsa nähden kohtisuoria putken seinämän lävistäviä reikiä. Reikien aiheuttama painehäviö saa näytevirtauksen jakautumaan tasaisesti koko virtauskammion leveydeltä. Kuvassa 3.6 on esitetty rei'itetyn jakeluputken toimintaa ja mahdollisia ongelmatilanteita.



Kuva 3.6. Kaaviokuva erilaisista rei'itetyistä jakeluputkista. Mukailten Senecal (1957).

Kuvan 3.6 putki A jakelee näytteen tasaisesti. Kaasun liike-energia häiritsee putken B jakaumaa, kun putkessa C virtauksen kitka ja painehäviö aiheuttaa epäideaalin jakau-
man. Aiemmat epäideaalisuudet yhdistettynä epäsuoran näytteensyötön aiheuttamaan häiriöön virtauksessa vaikuttavat putkessa D.

Toinen mahdollinen tapa toteuttaa tasainen jakelu putken pituussuunnassa on raollinen putki. Rei'itetyssä putkessa reiän sisäseinämä on usein riittävä kääntämään virtaussuun-
nan, mutta raollisesta putkesta tämä ominaisuus puuttuu. Raollisen jakeluputken A raken-
netta, ongelmia ja sen paranneltua versiota B on havainnollistettu kuvassa 3.7. (Senecal 1957)

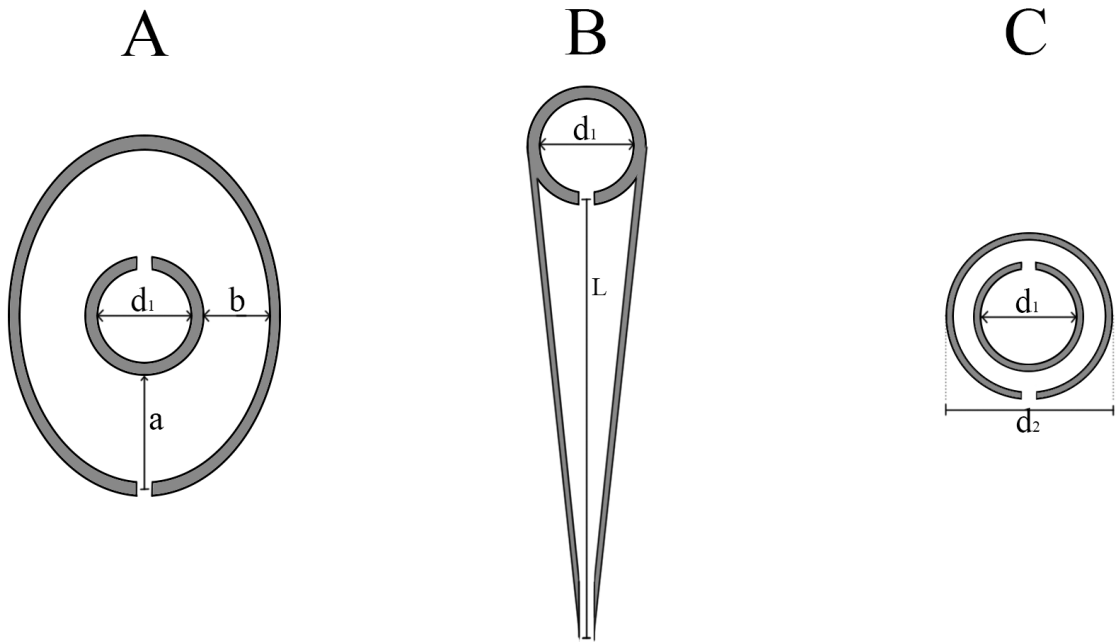


Kuva 3.7. Kaaviokuva raollisista näytteenjakeluputkista A ja B. Mukailten Senecal (1957).

Epäideaalin jakeluputken aiheuttama virtaussuunnan ja -nopeuden muutos aiheuttaisi näytevirtauksen pyörteilyä kammiossa sekoittaen diffuusioluokittelun toimintaa. Tämän välttämiseksi näytevirtaus johdetaan virtauskammioon erillisen virtausta ohjaavan näytteen-syöttömekanismin avulla. Näytevirtausta ohjaava mekanismi voi koostua esimerkiksi kahdesta rinnakkaisesta ohuesta levystä, joiden välissä on rako. Kuvassa 3.8 on esitetty erilaisia näytteen-syöttömekanismin poikkileikkausprofiileja. Kaikissa näytteen-syötön versioissa näyte syötetään laitteeseen aiemmin kuvaillun kaltaisesta, halkaisijaltaan pienestä akselinsa suhteen kohtisuoraan rei'itetystä jakeluputkesta. Kuvan 3.8 näytteen-syöttömekanismien mitat on taulukoitu taulukkoon 3.1.

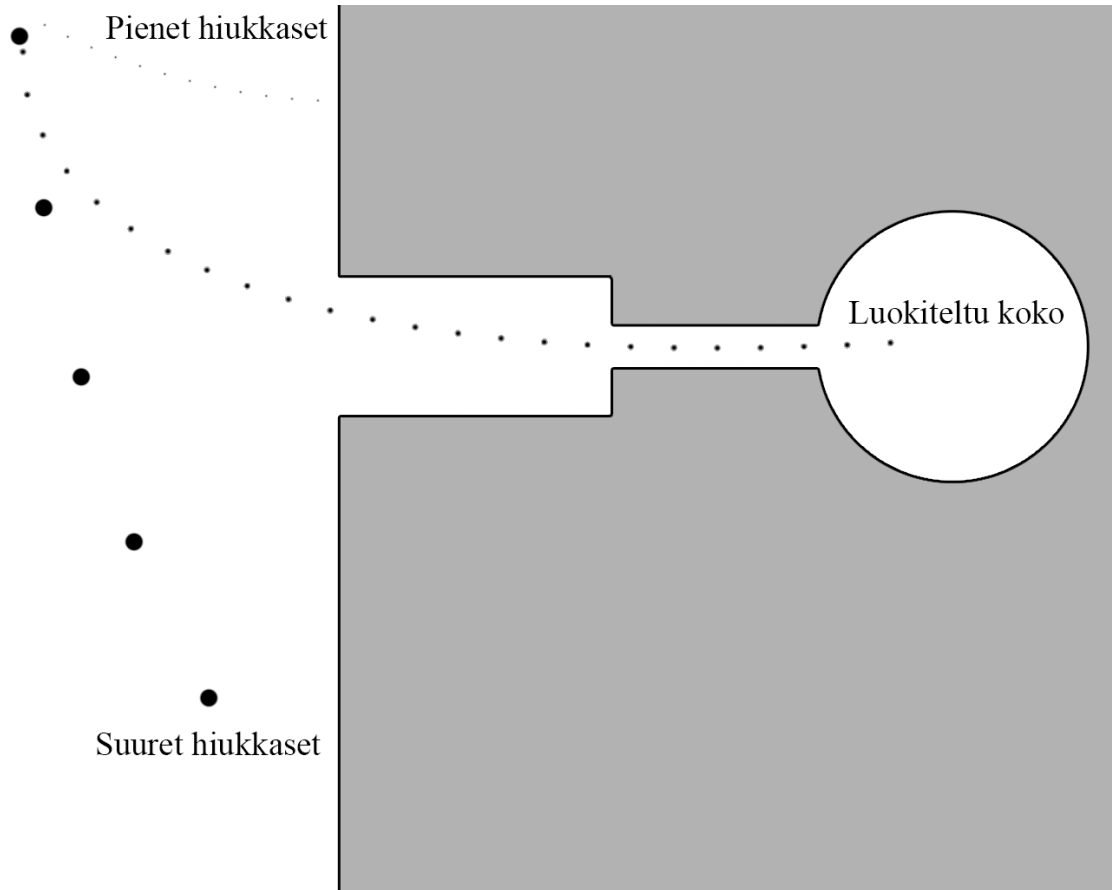
Taulukko 3.1. Näytteen-syöttömekanismien fyysiset mitat

Mekanismi	d_1	Muut mitat
A	4.0mm	$a = 5.0\text{mm}$ $b = 2.0\text{mm}$
B	4.0mm	$L = 30.0\text{mm}$
C	4.0mm	$d_2 = 3.0\text{mm}$



Kuva 3.8. Poikkileikkauskuva erilaisista näytteensyöttömekanismeista

Luokiteltu hiukkaskoko poistetaan virtauskammiosta sen seinämissä symmetrisesti sijaitsevien poistorakojen kautta. Luokitellun koon poistomekanismin poikkileikkaus on kuvassa 3.9.



Kuva 3.9. Poikkileikkauskuva luokitellun koon poistomekanismista reiän kohdalta

Kuvan 3.9 poistomekanismi on virtausgeometrialtaan samankaltainen kuin näytteensyöttömekanismi, mutta virtaussuunta on päinvastainen. Virtaus johdetaan ensin rakoon, joka sisältää useita pieniä reikiä. Reiät aiheuttavat suuren painehäviön, joten tilavuusvirtauksen poistokanavaan voidaan katsoa olevan sama jokaisesta reiästä. Tämä on olennainen vaatimus virtauksen symmetrian säilyttämiseksi itse virtauskammiossa.

3.3 Hiukcashäviöiden mallinnus

Laitteen läpäisyfunktioon vaikuttaa luokittelukammion lisäksi kaikki sen sisäisissä kanavissa tapahtuvat hiukcashäviöt. Tällaisia häviöitä aiheuttavia ilmiötä ovat esimerkiksi hiukkasten sedimentaatio painovoiman vaikutuksesta, diffuusiosta, inertiasta ja termoforeettisista voimista aiheutuva hiukkasten depositio kanavien seinille. (Brockmann 2011)

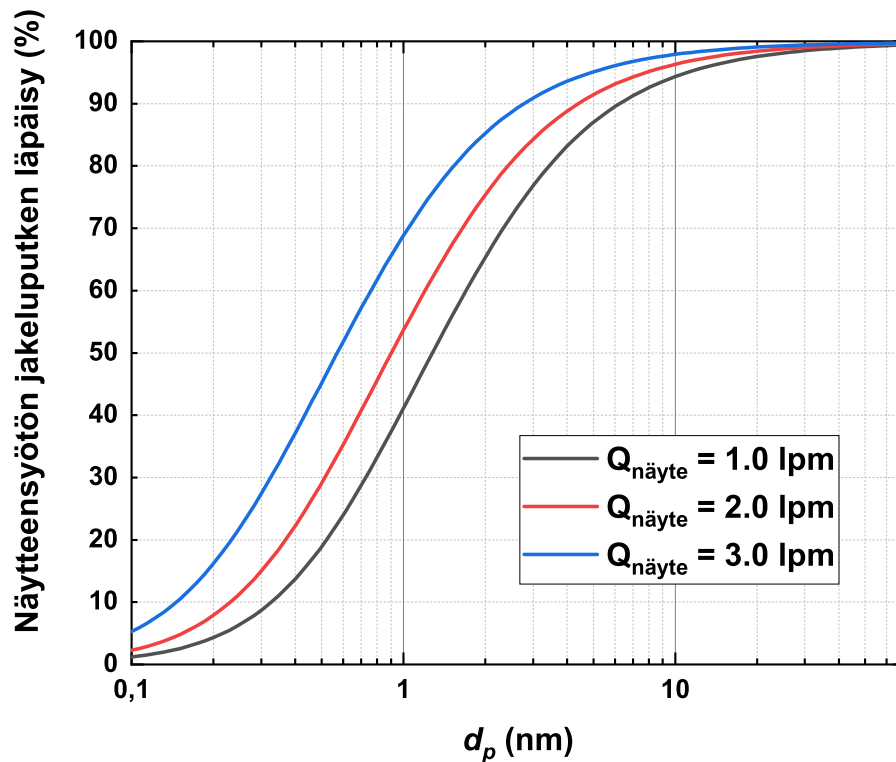
Painovoiman vaikutuksesta tapahtuva hiukkasten sedimentaatio, eli laskeutuminen kanavan pohjalle riippuu hiukkaselle ominaisesta, painovoiman aiheuttamasta terminaalinopeudesta V_{TS} . Ilmiö on voimakkain suurille hiukkasille, mutta alle 100 nm hiukkasille painovoimasta johtuvat häviöt ovat käytännössä merkityksettömiä. (Brockmann 2011) Tässä työssä tutkitun laitteen on tarkoitus luokitella yksinomaan pienempiä alle 100 nm hiukkasia, mistä johtuen painovoimasta johtuvien häviömekanismien tarkastelu sivuutetaan.

Laitteella luokiteltavat nanometriä kokoiset hiukkaset seuraavat virtauksen muutoksia selkeästi, joten laitteen sisäisillä näytelinjaston mutkilla, taivutuksilla tai vastaavilla virtaussuunnan muutoksilla ei ole merkittävää vaikutusta laitteiston läpäisyfunktioon. Laitteen rakenteesta johtuen suurilta poikkipinta-alan muutoksilta ei kuitenkaan voida välttyä, mutta pienellä Stokesin luvulla ($Stk < 0.1$) häviöt supistuvissa kanavissa ovat korkeintaan prosentin suuruusluokkaa (Muyschondt, McFarland ja Anand 1996). Tästä johtuen laitteen inertiaalisia häviöitä ei tässä työssä tarkastella tarkemmin.

Hiukkasten luokitteluun diffuusio soveltuu lähinnä alle 100 nm hiukkasille, joiden diffuusio-kerroin on tarpeeksi suuri aiheuttaakseen merkittävää muutosta hiukkasen liikkeessä. Diffuusiota tapahtuu kuitenkin jatkuvasti myös laitteen virtauskanavissa, jolloin se aiheuttaa merkittäviä hiukkashäviöitä vaikuttaen laitteen kokonaisläpäisyfunktioon. Luvussa 3.2 esitetyn laitteiston kokoluokittelu perustuu diffuusioon virtauskammiossa, joten luokittelussa tapahtuvia hiukkashäviöitä ei voida pitää varsinaisina diffuusiohäviöinä. Diffuusiosta johtuvia hiukkashäviöitä havaitaan kuitenkin laitteiston näytteensyöttömekanismeissa ja luokitellun hiukkaskoon poistomekanismeissa. Laitteiston kokonaisläpäisyyn pääosin vaikuttavat komponentit ovat näytteensyötön diffuusiohäviöt, virtauskammiossa tapahtuva kokoluokittelu ja näytteenpoiston diffuusiohäviöt.

3.4 Näytteensyötön häviöt

Diffuusioluokittelijan näytteensyötössä käytetyssä rei'itettyssä virtauksen jakeluputkessa tapahtuva diffuusio aiheuttaa varsinkin pienillä hiukkasilla läpäisyn heikkenemistä. Oletetaan jakeluputken toimivan ideaalisti, jolloin jokaisesta putken rei'ästä poistuu sama tilavuusvirtaus. Tällöin myös virtausnopeus putken pituussuunnassa hidastuu jakelurei'ien aiheuttaman painehäviön ja ulosvirtauksen takia. Mallinnetaan diffuusiosta aiheutuva läpäisyn heikkenemistä tarkastelemalla jakeluputkea jakamalla se pituussuunnassa pienempiin osiin ja huomioimalla jokaisessa osassa edeltävien osien aiheuttamat painehäviöt. Yksittäisen osan sisällä paine ja virtausnopeus oletetaan kuitenkin vakioiksi. Jakeluputken läpäisy hiukkaskoon funktiona eri virtausarvoilla on esitetty kuvassa 3.10.



Kuva 3.10. Jakeluputken kokonaisläpäisy hiukkaskoon funktiona eri näytevirtauksilla

Kuvasta 3.10 voidaan havaita virtauksen jakeluputkessa syntyvän merkittäviä diffuusiosta johtuvia hiukkashäviöitä alle 10 nanometrin kokoisilla hiukkasilla. Kuvasta 3.10 havaitaan suuremman virtausnopeuden pienentävän häviöitä jakeluputkessa, mutta todellisuudessa virtaus ei pysy laminaarina nopeilla virtauksilla. Diffuusion aiheuttamat häviöt turbulentsissa virtauksessa ovat kuitenkin samaa suuruusluokkaa.

Laitteiston näytteensyöttö tulisi toteuttaa mahdollisimman pienillä hiukkashäviöillä, mutta kuitenkin siten, että näytevirtaus pysyy laminaarisena sen yhdistyessä virtauskammiossa kulkevaan suojailmavirtaukseen. Kuvan 3.8 näytteensyöttömekanismien hiukkashäviöitä voidaan mallintaa käyttäen aiemmin luvussa 2.3 esitettyjä ratkaisuja yksinkertaisille geometrioille.

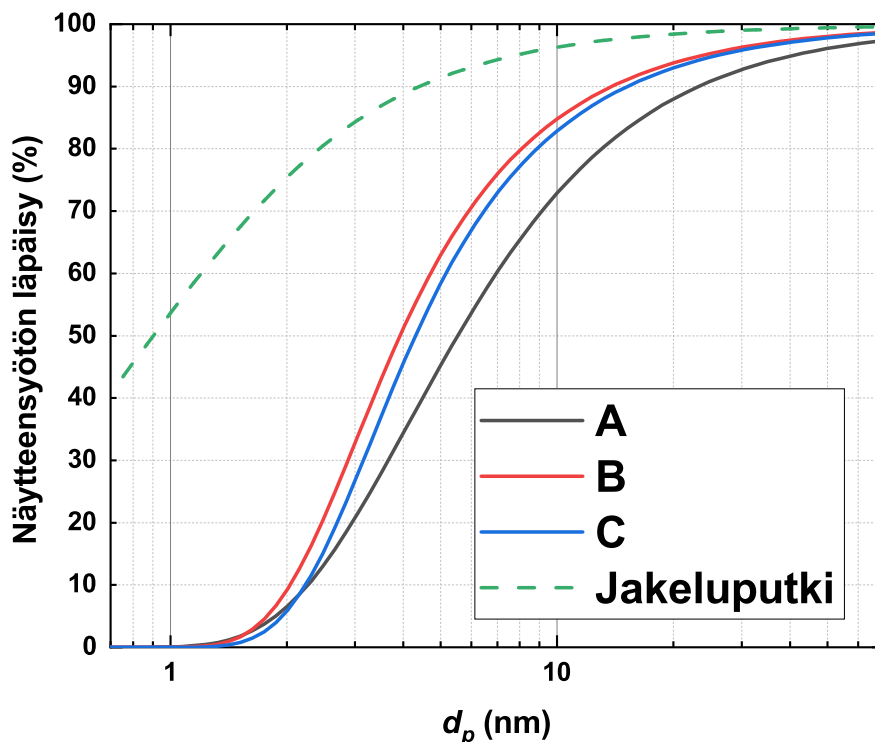
Kuvan 3.8 tyyppin A näytteensyöttömekanismi koostuu sisemmästä jakeluputkesta ja ulomasta poikkileikkaukseltaan ellipsin muotoisesta virtausta ohjaavasta putkesta. Pienet hiukkaset seuraavat virtauksen virtaviivoja lähes täydellisesti, joten tilaa jakeluputken ja ulomman putken välissä voidaan mallintaa leveänä suorakulmion muotoisena kanavana. Diffuusio toimii hiukkasia kanavan seinään ajavana pääasiallisena voimana, joten hiukkashäviöitä kanavassa voidaan approksimoida soveltamalla yhtälön 2.23 ratkaisua hiukkasten diffuusiosta johtuvalle häviölle poikkileikkaukseltaan suorakulmion muotoisessa kanavassa. Alunperin ontton sylinterin muotoinen virtauskanava voidaan jakaa pienempiin osiin siten, että yksittäisen osan sisäreunan ja ulkoreunan säteen erotus on infinitesi-

maalisen pieni. Osien läpäisy voidaan laskea yhtälöä 2.23 soveltaen, jolloin alkuperäisen virtauskanavan kokonaisläpäisy on kanavan osien läpäisyiden tulo.

Kuvan 3.8 B-tyyppin näytteensyöttömekanismi koostuu sisemmästä jakeluputkesta ja virtausta ohjaavista rinnakkaisista samansuuntaisista ohuista levyistä. Tila levyjen välissä on muodoltaan suorakulmainen särmiö, joten mekanismin hiukkashäviöitä voidaan jälleen approksimoida yhtälöä 2.23 soveltamalla.

Kuvan 3.8 C-tyyppin näytteensyöttömekanismi koostuu kahdesta sisäkkäisestä putkesta. Erona A-tyyppin mekanismiin on putkien koko ja muoto, sillä nyt myös ulompi putki on pyöreä ja täten hiukkasten mekanismissa kulkema matka on myös hieman lyhyempi. Suojailmavirtaus voi kuitenkin irrota C-tyyppin näytteensyöttömekanismin pinnasta ohittaessaan putken aiheuttaen turbulenttisia pyörteitä luokiteltavan näytteen sisältävään kokonaisvirtaukseen. A-tyyppin elliptinen ulkomuoto säilyttää virtauksen laminaarisena suuremmilla virtausnopeuksilla kuin C-tyyppin pyöreä ulkoputki.

Kuvassa 3.11 on esitetty eri mekanismien diffuusion huomioon ottava läpäisyfunktio näyttevirtauksen arvolla $Q_{näyte} = 2,0 \text{ lpm}$. Myös aiemmin kuvassa 3.10 esitellyn jakeluputken häviöt on esitetty kuvassa 3.11.



Kuva 3.11. Näytteensyöttömekanismien komponenttien läpäisy hiukkaskoon funktiona

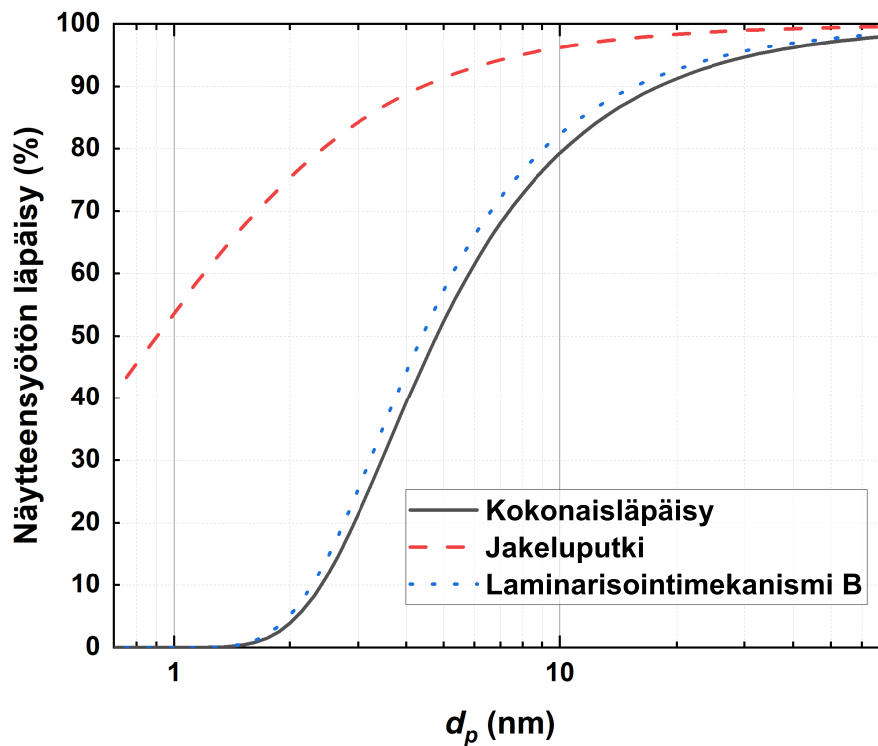
Kuvasta 3.11 havaitaan, että näytteensyötön laminarisointimekanismin geometrialla ei ole suurta merkitystä häviöiden suuruuteen. Kaikilla mallinnetuilla syöttömekanismeilla

4 nm hiukkasten häviöt ovat vähintään 50%. 1 nm hiukkasille näytteensyötön läpäisy on niin heikko, että niiden tehokas luokittelu laitteella on käytännössä mahdotonta mallinnuksessa käytetyllä 2.0 lpm näytevirtauksella. Jakeluputken merkitys häviöistä on pieni verrattuna laminarisointimekanismin aiheuttamiin häviöihin. Näytteensyötön kokonaisläpäisy $P_{näytteensyöttö}$ voidaan laskea jakeluputken sekä kulloinkin käytetyn laminarisointimekanismin läpäisyn tulona yhtälön 3.10 mukaisesti.

$$P(d_p) = P_{jakeluputki}(d_p) \cdot P_{mekanismi}(d_p), \quad (3.10)$$

missä $P_{jakeluputki}$ on jakeluputken läpäisy ja $P_{mekanismi}$ on laminarisointimekanismin läpäisy hiukkaskoon d_p funktiona.

Kuvassa 3.12 on esitetty koko näytteensyöttömekanismin mallinnettu läpäisy käyttäen kuvan 3.8 B-tyyppin laminarisointimekanismia näytevirtauksen arvolla $Q_{näyte} = 2.0$ lpm.



Kuva 3.12. Mallinnettu näytteensyötön kokonaisläpäisy

Kuvassa 3.12 esitettyä näytteensyötön kokonaisläpäisyfunktiota voidaan käyttää osana koko laitteen läpäisyfunktion mallinnusta.

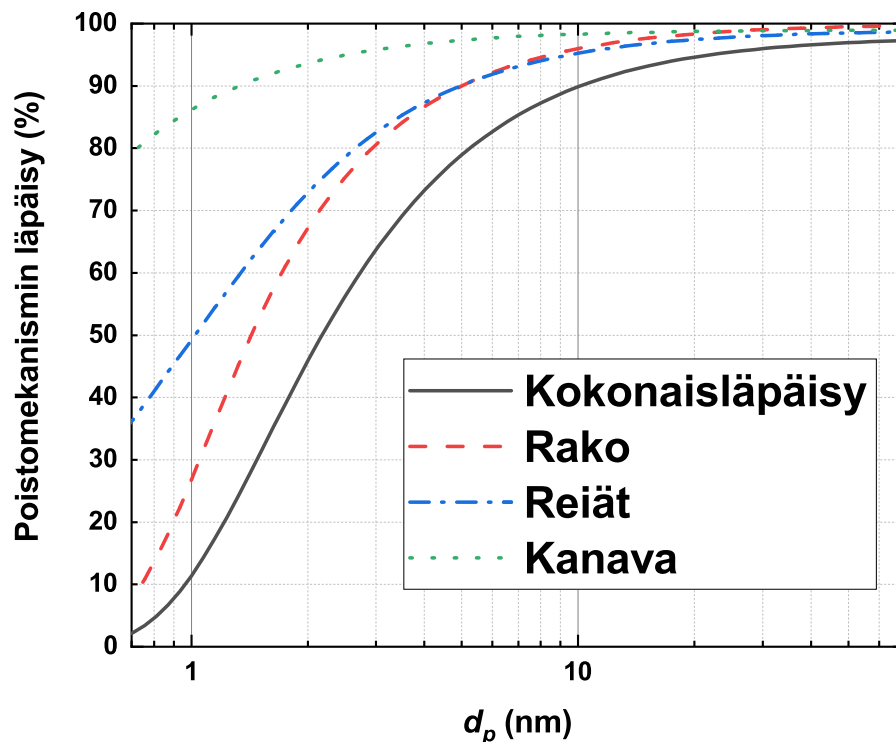
3.5 Luokitellun koon poistomekanismin häviöt

Luokiteltu aerosoli poistetaan virtauskammiosta sen seinämissä symmetrisesti sijaitsevien poistorakojen kautta. Poistomekanismi on rakenteeltaan vastaava systeemi kuin näytteensyötön jakeluputki, mutta nyt virtaussuunta on käänteinen näytteensyöttöön nähden. Mallinnetaan poistomekanismin häviöitä kuten näytteensyöttöä mallinnettiin luvussa 3.4.

Poistomekanismi koostuu poistoraoissa sijaitsevista poistorei'istä ja niiden jälkeisestä poistokanavasta. Poistoraon syvyys on 6,0 mm, leveys on 155 mm ja korkeus on 2,0 mm. 7 kappaletta halkaisijaltaan 0,4 mm poistoreikiä on porattu symmetrisesti poistoraon pohjalta poistokanavaan. Poistokanavan halkaisija on 4,0 mm ja sen efektiivinen pituus on noin 90 mm. Poistomekanismin kokonaisläpäisy on sen osien läpäisyjen tulo yhtälön 3.11 mukaisesti.

$$P(d_p) = P_{rako}(d_p) \cdot P_{reiät}(d_p) \cdot P_{kanava}(d_p). \quad (3.11)$$

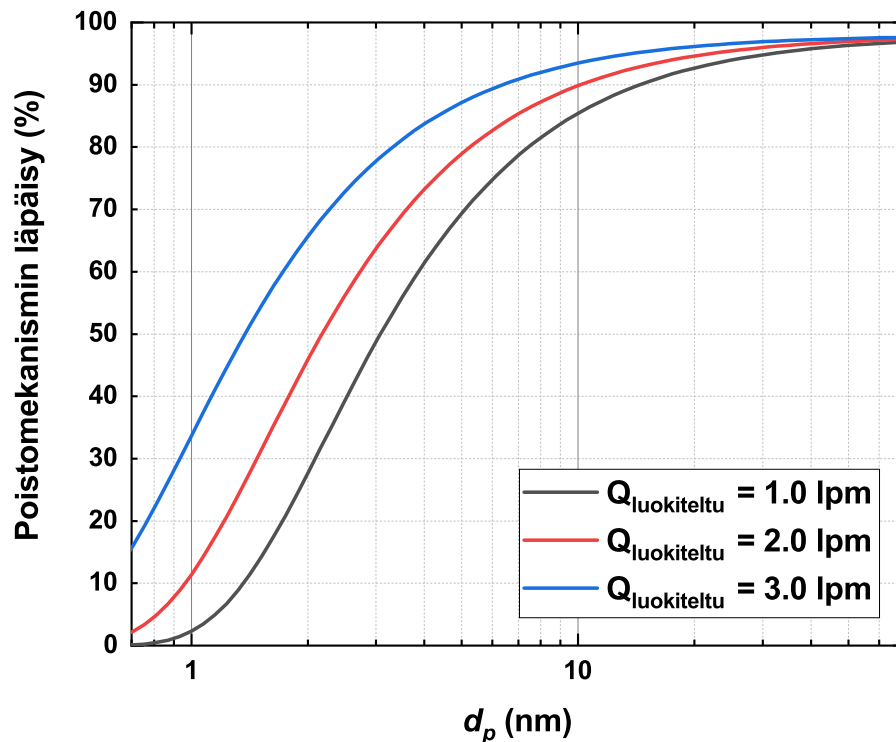
Kuvassa 3.13 on mallinnettu poistomekanismin osien läpäisyjä näytevirtauksella $Q_{näyte} = 2,0$ lpm.



Kuva 3.13. Poistomekanismin komponenttien läpäisy hiukkaskoon funktiona

Kuvassa 3.14 on mallinnettu laitteen luokitellun aerosolin poistomekanismin häviöitä eri

virtausarvoilla.



Kuva 3.14. Poistomekanismin läpäisy hiukkaskoon funktiona eri virtausarvoilla

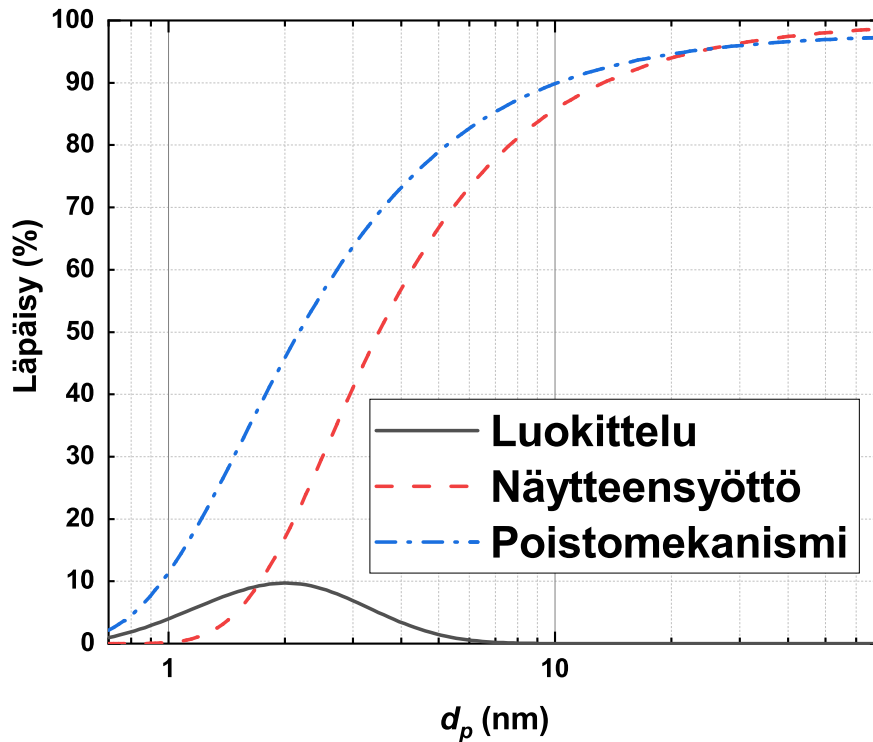
Kuvasta 3.14 havaitaan häviöiden pienenevän suuremmilla tilavuusvirtauksen arvoilla. Luokitteluvirtauksen arvolla 2,0 lpm poistomekanismin diffuusiosta johtuvat hiukkashäviöt ovat 2,1 nm hiukkasilla 50%. Esiitettyä luokitellun koon poistomekanismin läpäisyfunktiota voidaan edelleen käyttää laitteen kokonaisläpäisyfunktion mallinnuksessa.

3.6 Laitteen kokonaishäviöt ja läpäisyfunktio

Aiemmin luvussa 3.4 esitetty näytteensyötön läpäisymalli ja luvussa 3.5 esitetty poistomekanismin läpäisymalli sekä luvussa 3.2 esitetty luokittelufunktio on mahdollista yhdistää yhdeksi laitteen kokonaisläpäisyfunktiota kuvaavaksi malliksi. Laitteen läpäisyä on kokeellisesti mitattu eri virtauksilla ja hiukkaskoilla, joten työssä johdetun mallin parametrit on valittu siten, että ne kuvaavat todellista mittaustilannetta mahdollisimman tarkasti. Tässä luvussa esitetään näytteensyötön laminarisointimekanismin B-versiota käyttävän laitteen kokonaisläpäisyfunktion malli. Malli koostuu luvun 3.4 näytteensyöttömekanismin läpäisymallista, luvun 3.2 luokittelumallista ja luvun 3.5 luokitellun koon poistomekanismin läpäisymallista:

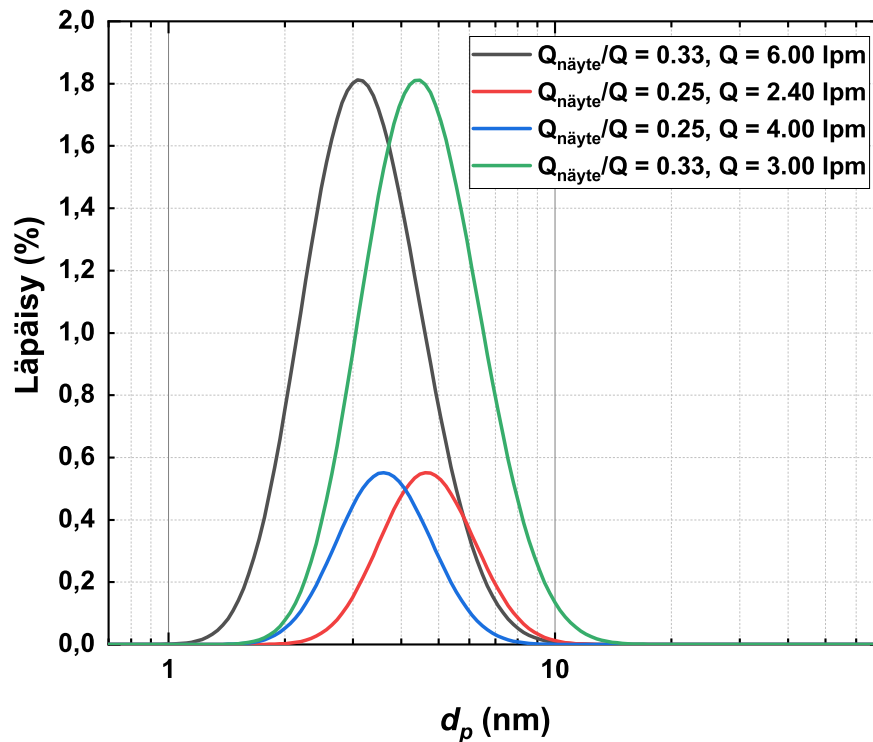
$$P(d_p) = P_{\text{näytteensyöttö}}(d_p) \cdot P_{\text{luokittelu}}(d_p) \cdot P_{\text{näytteenpoisto}}(d_p). \quad (3.12)$$

Yhtälön 3.12 komponentteittain mallinnettu läpäisy on esitetty kuvassa 3.15. Mallinnuksessa on käytetty näytevirtauksen arvoa $Q_{näyte} = 2,0 \text{ lpm}$ kokonaisvirtauksen ollessa $Q = 6,0 \text{ lpm}$.



Kuva 3.15. Diffuusioluokittelijan kokonaisläpäisyfunktion läpäisy komponentteittain

Kuvasta 3.15 havaitaan luokittelun aiheuttavan suurimman osan hiukcashäviöistä laitteessa. Luokittelutermistä johtuva teoreettinen maksimiläpäisy on täten korkeintaan noin 10% suuruusluokkaa. Kuvassa 3.16 on esitetty yhtälön 3.12 mukainen kokonaisläpäisy-funktio eri virtausarvoilla.



Kuva 3.16. Diffuusioluokittelijan kokonaisläpäisyfunktioita eri virtausarvoilla

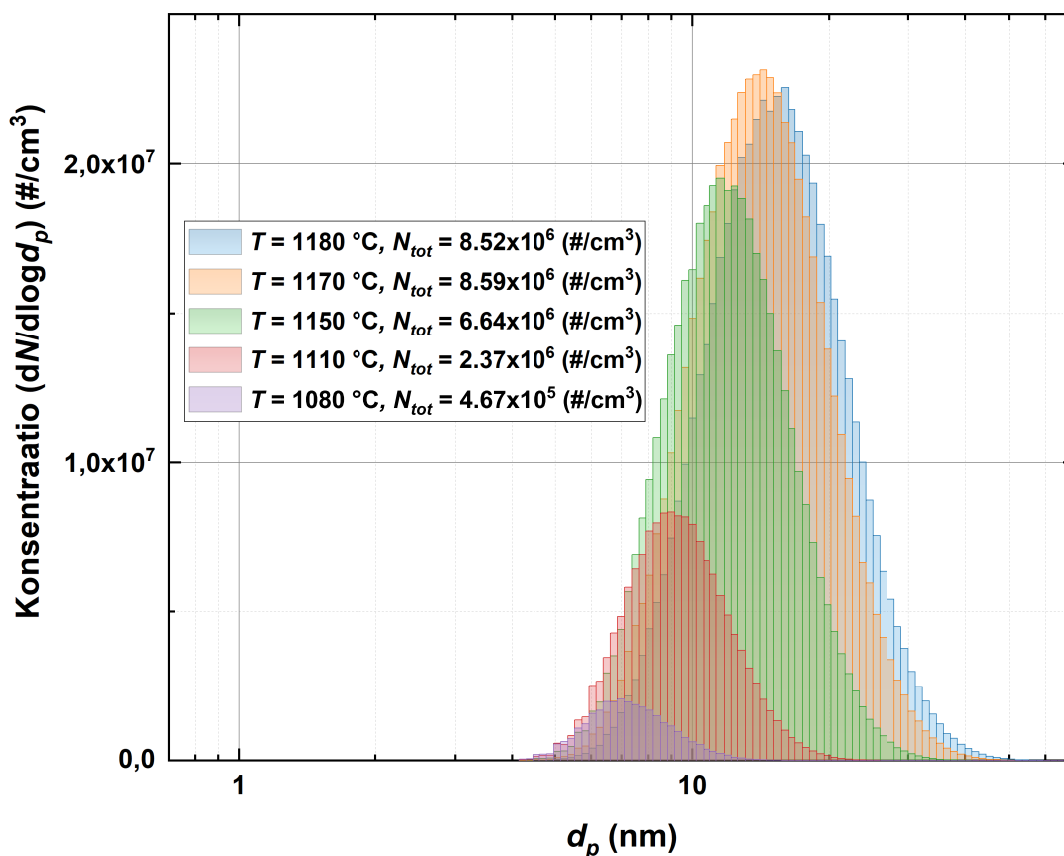
Luokittelu huomioiden laitteen kokonaisläpäisyn havaitaan kuvan 3.16 virtausarvoilla olevan korkeintaan prosenttien suuruusluokkaa. Laitteen resoluutio hiukkaskoon suhteen on parempi pienemillä virtaussuhteilla, mutta tällöin myös luokittelusta johtuva läpäisy on huomattavasti pienempi. Näytteensyötön ja luokitellun koon poistomekanismin häviöt laskevat kokonaisläpäisyn maksimin alle viidesosaan luokittelufunktion maksimiläpäisystä samoilla virtausarvoilla. Laitteen yksittäisten komponenttien aiheuttamat häviöt eivät selitä havaitun ilmiön suuruusluokkaa, mutta niiden aiheuttamat häviöt kuitenkin kertautuvat aiheuttaen suuren häviön kokonaisläpäisyfunktiossa.

4 KOKEELLINEN VALIDIOINTI

Tässä luvussa esitetään kokeellinen mittaussjärjestely luvussa 3 esitellyn teoreettisen mallinnuksen validointia varten. Kokeellisia mittaustuloksia verrataan mallinnettuihin tuloksiin ja näiden eroja selitetään tarkastelemalla mallinnuksessa tehtyjä oletuksia sekä tehtyjen mittausten epäideaalisuuksia ja epätarkkuuksia.

4.1 Kokeellinen mittaussjärjestely

Laitteen kokonaisläpäisyfunktio mitattiin käyttäen kuvan 4.2 mukaista mittaussjärjestelyä. Hiukkasia tuotettiin höyrystämällä hopeaa putkiuunilla. Tuotetut hiukkaset johdettiin radioaktiivisen neutralointilaitteen läpi, jonka jälkeen hiukkasista luokiteltiin tunnetun sähköisen liikkuvuuden hiukkasia differentiaalisella liikkuvuusanalysointilaitteella, jonka elektrodin jännitettä ohjattiin korkeajännitelähteellä. Menetelmällä tuotetut hiukkaset ovat kooltaan hyvin pieniä (alle 20 nm), joten neutraloinnin jälkeen niillä on korkeintaan yhden alkeisvarauksen suuruinen sähkövaraus. Uunin muodostaman hiukkasjakauman oletettiin lämmityksen jälkeen pysyvän vakaana, mutta tarkistusmittauksia uunin hiukkasjakaumalle tehtiin DMA:n ja CPC:n muodostamalla skannaavalla liikkuvuuskokoluokittelijalla (SMPS, engl. Scanning Mobility Particle Sizer). Kuvassa 4.1 on esitetty SMPS:llä mitattuja uunin tuottamia hiukkaskokojakaumia eri lämpötiloilla.

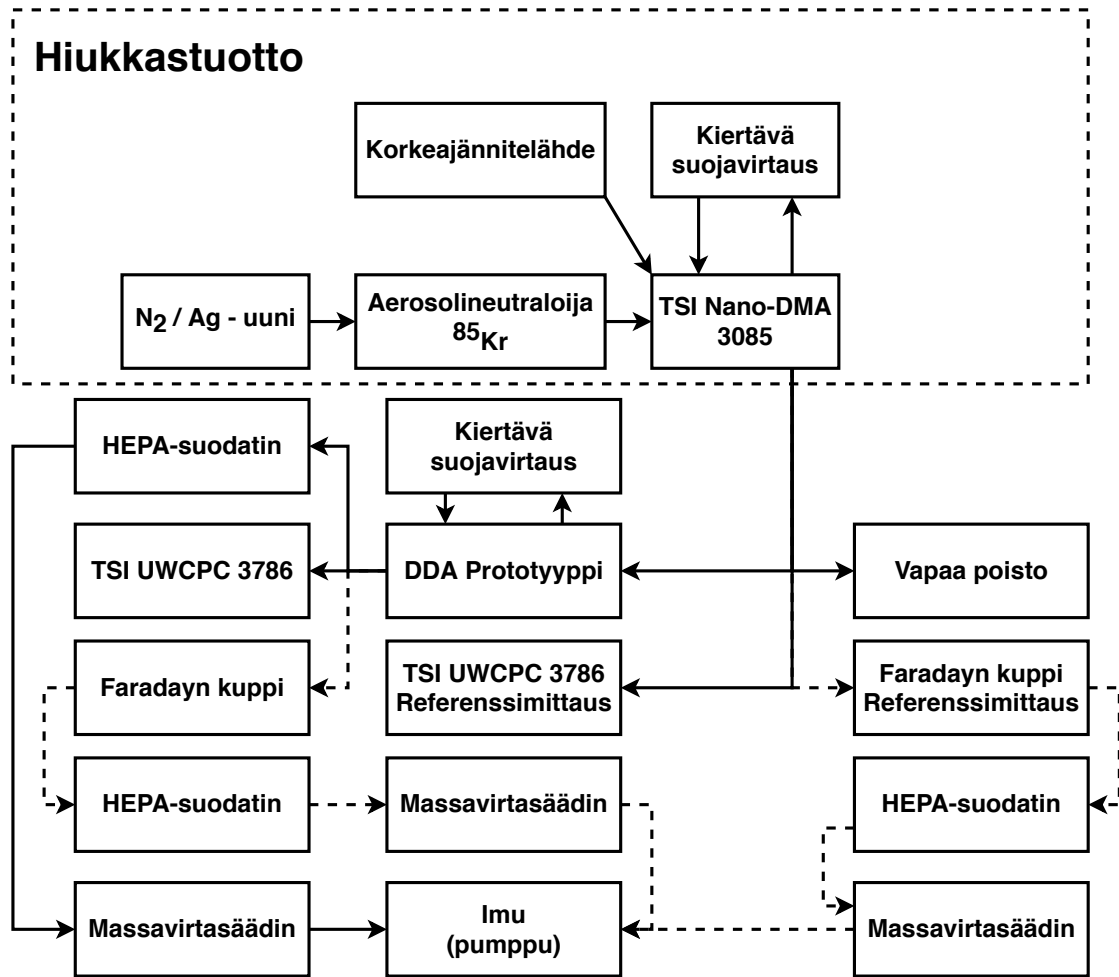


Kuva 4.1. Eri uunin lämpötiloilla generoituja hiukkaskokojakaumia

Hiukkasten lukumääräkonsentraatio määritettiin pääosassa mittauksia vettä kasvatusnesteinä käytävällä kondensaatiohiukkaslaskurilla. Vaihtoehtoisena mittausmenetelmänä hiukkasten lukumääräkonsentraatio määritettiin mittaamalla Faradayn kupilla ja elektrometrillä varattujen hiukkasten aiheuttamaa sähkövirtaa. Mittauksissa hiukkasten sähköiseen luokitteluun käytetty DMA oli TSI Nano-DMA 3085 ja mittauksissa käytetty hiukkaslaskuri oli TSI 3786, jonka 50% havaintorajan on mitattu olevan noin 4,3 nm (Mordas et al. 2008). Havaintorajasta johtuen mittauksen hiukkaskoon alarajana toimi noin 4 nm.

Generoidun testijakauman lukumääräkonsentraatio mitattiin kondensaatiohiukkaslaskurilla ja näyttelinjat mitoitettiin siten, että diffuusioluokittelija voitiin lisätä linjastoon ainoana hiukkahäviöitä lisäävänä tekijänä referenssimittaukseen nähden. Referenssimittaus mitattiin ilman luokittelulaitetta näyttelinjassa, minkä jälkeen mittaus toistettiin siten, että näyte kulki luokittelulaitteen läpi. Laitteen kokonaisläpäisy voidaan määrittää mitattujen lukumääräkonsentraatioiden suhteen jokaiselle DMA:lla valitulle liikkuvuudelle erikseen.

Kuvassa 4.2 on esitetty mittausjärjestelyn kaaviokuva. Kuvaan on katkoviivalla merkitty vaihtoehtoisesti käytetty mittaus tapa.



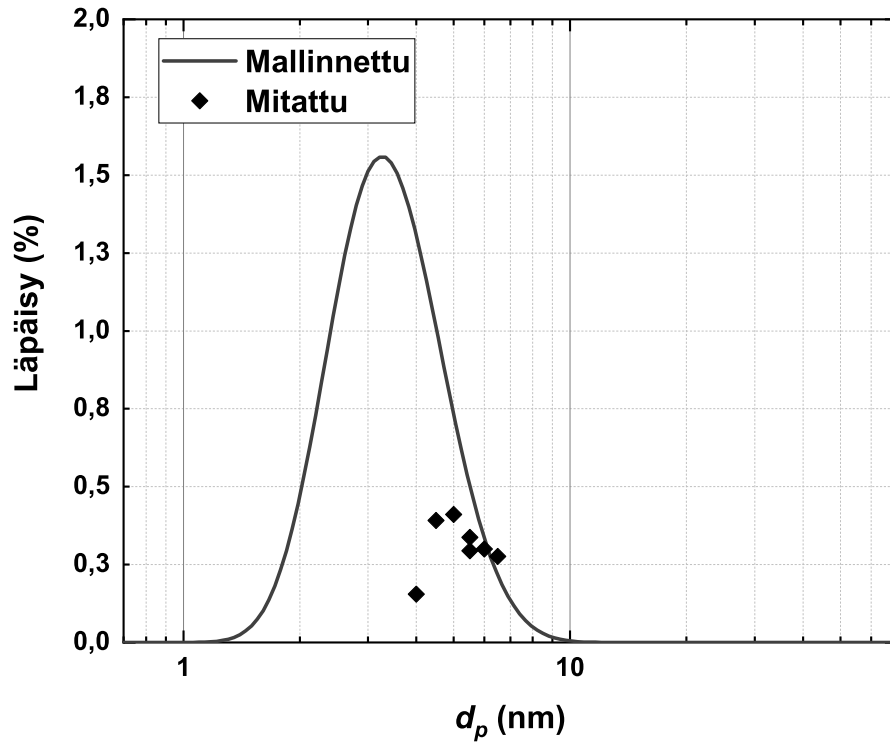
Kuva 4.2. Kaaviokuva kokonaisläpäisyn mittausjärjestelmästä

Mittausten aikana laite oli varustettu läpinäkyvästä muovista valmistetulla kansiosalla, jonka hiukkasläpäisy oletettiin nolllaksi. Tästä johtuen mittauksissa oli efektiivisesti käytössä vain toinen kahdesta poistokanavasta ja mitatun läpäisyn on oletettu olevan puolet pienempi kuin kahdella poistokanavalla. Poistokanavien virtauksia ei kyetty määrittämään erikseen, joten mahdolliset epäideaalisuudet toisen kanavan geometriassa aiheuttivat kokonaisvirtaukseen epäsymmetrisyyttä.

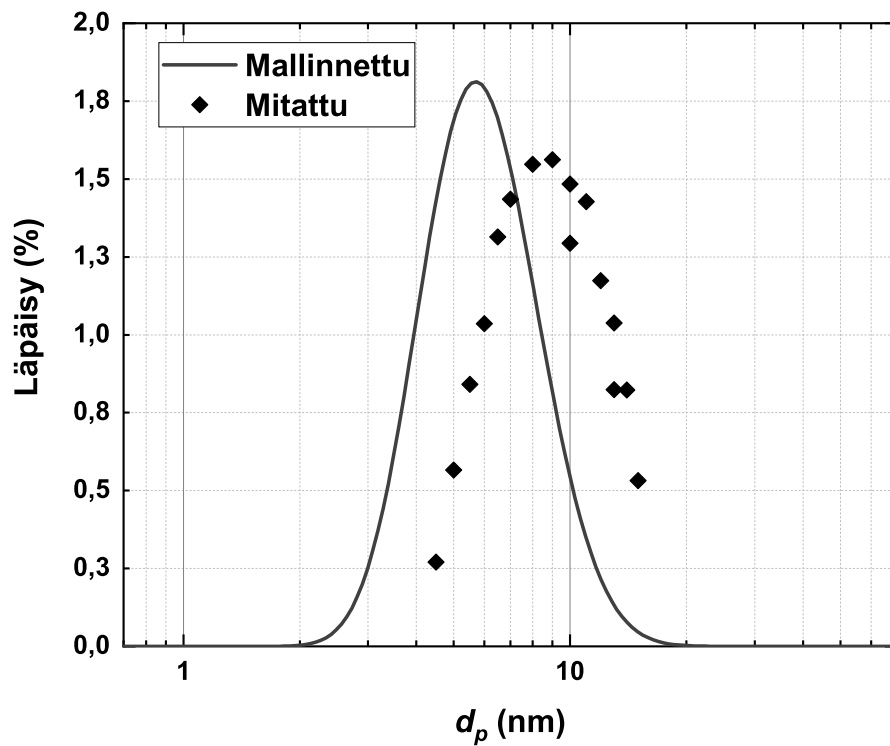
Mittauksissa laitteen näytteensyöttömekanismin havaittiin olevan herkkä laitteen virtauskammion geometrian epäideaalisuuksille. Näytteensyötön laminarisointimekanismin tarkka sijoittaminen laitteen virtauskammiossa oli käytännössä mahdotonta ja tästä johtuen näytevirtauksen syöttö virtauskammion kokonaisvirtaukseen on ollut mahdollisesti epäsymmetrinen.

4.2 Mittaustulokset ja vertailu malliin

Kuvassa 4.3 on esitetty tyypillisiä mittaustuloksia ja mittauksia vastaavilla virtausarvoilla mallinnettuja läpäisyfunktioita.



(a) Näytevirtaus $Q_{\text{näyte}} = 2,0$ lpm, kokonaisvirtaus $Q = 6,0$ lpm



(b) Näytevirtaus $Q_{\text{näyte}} = 0,6$ lpm, kokonaisvirtaus $Q = 1,8$ lpm

Kuva 4.3. Tyypillisiä mitattuja ja mallinnettuja läpäisyjä.

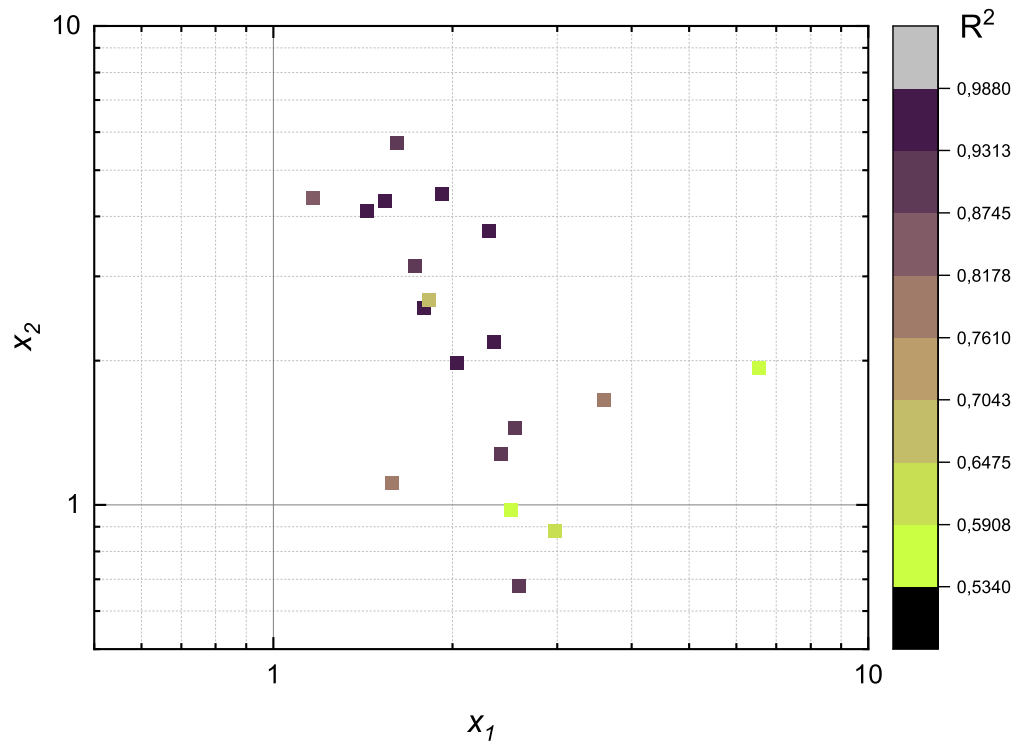
Kuvasta 4.3 havaitaan mitatun läpäisyn maksimiarvon olevan samaa kuin mallinnettu tulos. Lisäksi voidaan huomata suurimman mitatun läpäisyn arvon sijaitsevan hieman suuremmalla hiukkaskoolla kuin mallinnetun. Tähän on todennäköisesti vaikuttanut näytteen-syöttömekanismin epäideaalisuudet ja näytteenpoiston epäsymmetrisyyden aiheuttama muutos ideaalivirtauksesta. Tämän virtausprofiilin muutoksen tarkempi huomiointi olisi mahdollista esimerkiksi CFD-mallinnuksen avulla.

Aiemmin luvussa 3 esitetty läpäisymalli on sovittavissa mittausdataan kahden soviteparametrina toimivan korjauskertoimen avulla. Korjauskerrointa x_1 sovelletaan mallissa käytetyn diffuusiokerroimen D arvon korjaamiseen siten, että mallin läpäisy lasketaan hiukkaselle, jonka diffuusiokerroin on $x_1 \cdot D$. Korjauskerrointa x_2 sovelletaan läpäisevän osuuden P korjaamiseen siten, että mallin kokonaisläpäisy on $x_2 \cdot P$. Taulukossa 4.1 on esitetty soviteparametrien merkitys mittaus tulosten ja mallin vertailun kannalta.

Taulukko 4.1. *Soviteparametrien merkitys mallinnettujen ja mitattujen tulosten vertailussa*

Parametri	Merkitys
$x_1 = 1$	Mallinnuksessa oletettu diffuusiokerroin vastaa mitattua
$x_1 > 1$	Mallinnettu läpäisy on painottunut mitattua läpäisyä pienemmille hiukkaskoille
$x_1 < 1$	Mallinnettu läpäisy on painottunut mitattua läpäisyä suuremmille hiukkaskoille
$x_2 = 1$	Mallinnettu läpäisy on yhtä suuri kuin mitattu läpäisy
$x_2 > 1$	Mallinnettu läpäisy on suurempi kuin mitattu läpäisy
$x_2 < 1$	Mallinnettu läpäisy on pienempi kuin mitattu läpäisy

Mittausdata koostui yhteensä 226 mittauspisteestä, jotka on jaettu 26 eri mittausarjaan käytettyjen virtausarvojen perusteella. Pienimmän neliösumman sovituksen jälkeen karkeat sovitevirheet (soviteparametrien arvo yli 10 tai alle 0.1, 4 tulosta) ja mittausdataa heikosti kuvaavat sovitteet ($R^2 < 0.25$, 3 tulosta) jätettiin käsittelemättä tarkemmin. Kuvassa 4.4 on esitetty 19 jäljelle jääneen datasarjan soviteparametriparin arvot. Kuvan 4.4 värikartta kuvaa datasarjan ja soviteen välistä R^2 -arvoa.



Kuva 4.4. Soviteparametrien arvot. Värikartta: sovitteiden R^2 -arvot.

Keskiarvo ja keskihajonta parametrille x_1 on 2.34 ± 1.18 ja soviteparametrille x_2 2.59 ± 1.48 . Parametrien suurehko hajonta on todennäköisesti seurausta mittaustilanteen näytteen-
syötön sijainnin epätarkkuudesta ja tästä johtuvasta epäsymmetrisestä virtauksesta vir-
tauskammiossa.

5 YHTEENVETO

Tässä kandidaatintyössä pyrittiin selvittämään Arffman et al. (2017) esittämään rakenteeseen perustuvan diffuusioluokittelijan hiukcashäviöitä. Laitteen etuna usein käytettyihin sähköisiin luokittelumenetelmiin verrattuna on sen riippumattomuus luokiteltavien hiukkasten sähköisistä ominaisuuksista.

Laitteen kokonaisläpäisyä tutkittiin kokeellisin mittauksin. Kokeellisissa mittaustuloksissa havaittu läpäisy on huomattavasti pienempi kuin luokittelun teoreettinen maksimiläpäisy, ollen korkeintaan noin viidesosan teoreettisesta läpäisystä. Tässä työssä pyrittiin selittämään teoreettisen luokittelufunktion ja mitatun läpäisyn eroa mallintamalla laitteen näytteen syötön ja luokittelun aerosolin poistomekanismin häviöitä.

Tässä työssä esitettiin laitteen kokonaisläpäisyfunktion malli, joka ottaa huomioon luokittelun lisäksi näytteen syötössä ja luokitellun koon poistossa tapahtuvat häviöt. Häviöiden oletettiin johtuvan vain diffuusiosta, sillä tarkastelu keskittyi pieniin, alle 20 nm, hiukkaskokoihin. Muiden häviömekanismien tarkempi tarkastelu sivuutettiin. Esitetty malli perustuu luvussa 3 esitettyyn luokittelufunktioon ja luvussa 2 esitettyihin diffuusioyhtälöiden ratkaisuihin, joita on sovellettu laitteen virtauskanavien geometrioiden tarkasteluun.

Suurimpien häviöiden oletettiin tapahtuvan laitteen näytteen syöttömekanismeissa, minkä takia tarkastelu painottui erityisesti näytteen syötön häviöiden tarkasteluun. Näytteen syötölle esitettiin kolme vaihtoehtoista mekanismia, joiden mallinnettuja läpäisyfunktioita vertailemalla voidaan valita paras vaihtoehto laitteen läpäisyn maksimoimiseksi. Mallinnuksessa kuitenkin havaittiin eri mekanismien häviöiden olevan keskenään samaa suuruusluokkaa, joten mekanismivalinnalla ei voida merkittävästi parantaa laitteen näytteen syötön läpäisyä. Laitteen luokitteluominaisuutta ja luokitellun koon poistomekanismin vaikutusta luokitteluun arvioitiin myös niinkään samankaltaisen tarkastelun kautta. Laitteen luokittelussa ei oletettu tapahtuvan ylimääräisiä häviöitä, vaan luvussa 3 esitellyn luokittelufunktion oletettiin kuvaavan luokittelukammion läpäisyä täydellisesti. Poistomekanismin rakenteen havaittiin aiheuttavan lähes yhtä suuret häviöt kuin näytteen syötön mekanismin. Näytteen syötön ja poistomekanismin läpäisyjen merkittävä parantaminen vastaavaa rakennetta käyttäen todettiin käytännössä mahdottomaksi.

Työssä esitetyn luokittelu- ja häviömallinnuksen tuloksia verrattiin kokeellisiin mittaustuloksiin. Mallin havaittiin kuvaavan laitteen hiukcashäviöitä melko hyvin (keskimääräinen $R^2 = 0.84$), mutta kokeellisten mittaustulosten suuri hajonta heikentää mallin luotettavuutta mittaustuloksiin nähden. Kokeellisesti mitatun läpäisyn havaittiin olevan samaa

suuruusluokkaa mallin antamien tulosten kanssa, mutta mitattu maksimilämpäisy havaittiin aina suuremmilla hiukkasilla kuin mallinnettu läpäisy. Tämän oletettiin johtuvan epäsymmetrisen näytteenpoiston aiheuttamasta epäideaalista virtauksesta ja näytteensyötön epätarkasta sijainnista virtauskammiossa. Mittaustulokset noudattavat pääosin mallinnetun läpäisyfunktion muotoa, joten laitteen luokitteluominaisuuden voidaan olettaa toimivan oikein. Tarkempi mallinnus vaatisi laitteen virtausprofiilien huomiointia esimerkiksi numeerisen virtausdynamiikan työkalujen avulla.

Työssä tutkitun laitteen läpäisytehokkuuden merkittävä parantaminen esitetyn kaltaista rakennetta käyttäen voidaan todeta käytännössä mahdolliseksi. Mittauksissa käytetyillä tyypillisillä virtausnopeuksilla hiukkasten kulkeman matkan näytteensyötön ja luokittelun koon poistomekanismin kanavissa täytyisi olla murto-osa nykyisestä, jotta läpäisy olisi merkittävästi suurempi. Matkan lyhentäminen on kuitenkin mahdotonta virtauskammion geometriasta johtuen: poistokanavan täytyy olla vähintään kammion leveyden pituinen ja näytevirtaus vaatii noin 30 mm häiriöttömän matkan virtauksen tasoittumiselle ennen sen liittämistä kokonaisvirtaukseen. Esitetyn kaltaisen diffuusioluokittelijan läpäisytehokkuuden parantaminen onnistuisi käyttämällä toisenlaista luokittelukammion geometriaa. Luokittelukammion mitoitus täytyy toteuttaa siten, että näyte voidaan syöttää kammioon ja luokiteltu aerosoli voidaan poistaa kammion mahdollisimman lyhyitä kanavia käyttäen. Haasteeksi tulee luokittelukammion tilavuuden säilyttäminen sellaisena, että aerosolin viipymäaika kammiossa riittää diffuusioon perustuvaan luokitteluun.

LÄHTEET

- Allen, M. D. ja Raabe, O. G. (1985). Slip Correction Measurements of Spherical Solid Aerosol Particles in an Improved Millikan Apparatus. *Aerosol Science and Technology* 4.3, 269–286.
- Alonso, M., Kousaka, Y., Hashimoto, T. ja Hashimoto, N. (1997). Penetration of Nanometer-Sized Aerosol Particles Through Wire Screen and Laminar Flow Tube. *Aerosol Science and Technology* 27.4, 471–480.
- Arffman, A., Juuti, P., Harra, J. ja Keskinen, J. (2017). Differential diffusion analyzer. *Aerosol Science and Technology* 51.12, 1429–1437.
- Brockmann, J. E. (2011). Aerosol Transport in Sampling Lines and Inlets. *Aerosol Measurement*. John Wiley & Sons, Ltd. Luku 6, 68–105.
- Cheng, Y.-S. (2011). Instruments and Samplers Based on Diffusional Separation. *Aerosol Measurement*. John Wiley & Sons, Ltd. Luku 16, 365–379.
- Chu, B., Kerminen, V.-M., Bianchi, F., Yan, C., Petäjä, T. ja Kulmala, M. (2019). Atmospheric new particle formation in China. *Atmospheric Chemistry and Physics* 19.1, 115–138.
- Cunningham, E. (1910). On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles through Fluid Medium. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 83.563, 357–365.
- Dada, L., Lehtipalo, K., Kontkanen, J., Nieminen, T., Baalbaki, R., Ahonen, L., Duplissy, J., Yan, C., Chu, B., Petäjä, T., Lehtinen, K., Kerminen, V.-M., Kulmala, M. ja Kangasluoma, J. (2020). Formation and growth of sub-3-nm aerosol particles in experimental chambers. *Nature Protocols* 15.3, 1013–1040.
- Einstein, A. (1905). Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. *Annalen der Physik* 322.8, 549–560.
- Flagan, R. C. (2011). Electrical Mobility Methods for Submicrometer Particle Characterization. *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*. John Wiley & Sons, Ltd. Luku 15, 339–364.
- Gormley, P. ja Kennedy, M. (1949). *Diffusion from a Stream Flowing Through a Cylindrical Tube*. Vol. 52. Proceedings of the Royal Irish Academy. Section A, 163–169.

- Hietikko, R., Kuuluvainen, H., Harrison, R. M., Portin, H., Timonen, H., Niemi, J. V. ja Rönkkö, T. (2018). Diurnal variation of nanocluster aerosol concentrations and emission factors in a street canyon. eng. *Atmospheric Environment* 189, 98, 106.
- Hinds, W. C. (1999). *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*. 2nd. New York: Wiley.
- Kerminen, V. .-, Paramonov, M., Anttila, T., Riipinen, I., Fountoukis, C., Korhonen, H., Asmi, E., Laakso, L., Lihavainen, H., Swietlicki, E., Svenningsson, B., Asmi, A., Pandis, S. N., Kulmala, M. ja Petäjä, T. (2012). Cloud condensation nuclei production associated with atmospheric nucleation: a synthesis based on existing literature and new results. *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.24. Copyright - Copyright Copernicus GmbH 2012; Last updated - 2013-02-15, 12037.
- Knutson, E. (1999). History of Diffusion Batteries in Aerosol Measurements. *Aerosol Science & Technology* 31, 83–128.
- Kulkarni, P., Baron, P. ja Willeke, K. (2011). Fundamentals of Single Particle Transport. 15–30.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Maso, M. D., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Birmili, W. ja McMurry, P. (2004). Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *Journal of Aerosol Science* 35.2, 143–176.
- Kumar, P., Fennell, P., Symonds, J. ja Britter, R. (2008). Treatment of losses of ultrafine aerosol particles in long sampling tubes during ambient measurements. *Atmospheric Environment* 42.38, 8819–8826.
- Mordas, G., Manninen, H., Petäjä, T., Aalto, P., Hämeri, K. ja Kulmala, M. (2008). On operation of the ultra-fine water-based CPC TSI 3786 and comparison with other TSI models (TSI 3776, TSI 3772, TSI 3025, TSI 3010, TSI 3007). *Aerosol Science and Technology* 42, 152–158.
- Muyshondt, A., McFarland, A. R. ja Anand, N. K. (1996). Deposition of Aerosol Particles in Contraction Fittings. *Aerosol Science and Technology* 24.3, 205–216.
- Rideal, E. K. (1930). *An Introduction to Surface Chemistry. (New and revised edition.)* Cambridge.
- Rönkkö, T., Kuuluvainen, H., Karjalainen, P., Keskinen, J., Hillamo, R., Niemi, J. V., Pirjola, L., Timonen, H. J., Saarikoski, S., Saukko, E., Järvinen, A., Silvennoinen, H., Rostedt, A., Olin, M., Yli-Ojanperä, J., Nousiainen, P., Kousa, A. ja Dal Maso, M. (2017). Traffic is a major source of atmospheric nanocluster aerosol. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 114.29, 7549–7554.

Rönkkö, T., Virtanen, A., Kannosto, J., Keskinen, J., Lappi, M. ja Pirjola, L. (2007). Nucleation mode particles with a nonvolatile core in the exhaust of a heavy duty diesel vehicle. *Environmental Science & Technology* 41.18, 6384–6389.

Senecal, V. E. (1957). Fluid Distribution in Process Equipment. *Industrial & Engineering Chemistry* 49.6, 993–997.

Shiraiwa, M., Ueda, K., Pozzer, A., Lammel, G., Kampf, C. J., Fushimi, A., Enami, S., Arangio, A. M., Fröhlich-Nowoisky, J., Fujitani, Y., Furuyama, A., Lakey, P. S. J., Lelieveld, J., Lucas, K., Morino, Y., Pöschl, U., Takahama, S., Takami, A., Tong, H., Weber, B., Yoshino, A. ja Sato, K. (2017). Aerosol Health Effects from Molecular to Global Scales. *Environmental Science & Technology* 51.23. PMID: 29111690, 13545–13567.